



# Lithographie haute résolution assistée par plasmons de surface

Marianne Consonni

## ► To cite this version:

| Marianne Consonni. Lithographie haute résolution assistée par plasmons de surface. Physique [physics]. Université de Technologie de Troyes, 2008. Français. <tel-00373708>

**HAL Id: tel-00373708**

**<https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00373708>**

Submitted on 7 Apr 2009

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

---

# THESE

*pour l'obtention du grade de*

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ  
DE TECHNOLOGIE DE TROYES  
Spécialité : OPTIQUE ET NANOTECHNOLOGIES**

*présentée et soutenue par*

**Marianne CONSONNI**

*le 13 novembre 2008*

---

**Lithographie haute résolution  
assistée par plasmons de surface**

---

## JURY

M. J. -J. GREFFET	PROFESSEUR DES UNIVERSITES	Président
M. M. BESACIER	MAITRE DE CONFERENCES	Examineur
M. J. HAZART	DOCTEUR	Examineur
M. G. LERONDEL	PROFESSEUR DES UNIVERSITES	Directeur de thèse
M. J. -C. WEEBER	PROFESSEUR DES UNIVERSITES	Rapporteur
M. C. D. WRIGHT	PROFESSOR	Rapporteur

Personnalité invitée

M. D. MACIAS	MAITRE DE CONFERENCES
--------------	-----------------------



# Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier les membres de mon jury de thèse :

- Monsieur Jean-Jacques Greffet pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury,
- Messieurs Jean-Claude Weeber et David Wright pour avoir accepté de rapporter ma thèse et pour la pertinence de leurs remarques,
- Messieurs Maxime Besacier et Demetrio Macias pour avoir fait partie de mon jury respectivement en tant qu'examinateur et invité et pour l'intérêt qu'ils ont porté à mes travaux.

Je voudrais ensuite remercier Patrick Chaton, responsable du service SIONA du département Optronique du Léti et Pascal Royer, directeur du LNIO de l'Université de Technologie de Troyes, pour m'avoir intégrée dans leurs équipes et m'avoir donné l'opportunité d'effectuer cette thèse. Aussi bien à Grenoble qu'à Troyes, l'accueil a toujours été des plus chaleureux, un grand merci à vous deux !

Un grand merci également à Gilles Léron del, mon directeur de thèse, pour ses conseils scientifiques et sa disponibilité...et pour m'avoir démontré, en bon normand, qu'à Troyes, mis à part l'andouillette, on savait aussi faire d'excellentes crêpes...

Merci à Jérôme Hazart, mon encadrant CEA, pour m'avoir guidée dans les méandres des calculs de modes et autres optimisations...C'était pas gagné d'avance, mais finalement, on y arrive toujours ! Merci aussi pour toutes ces petites discussions musicales, mais parfois très techniques, qui faisaient oublier, l'espace d'un instant, qu'on était là pour travailler sur les plasmons...

Je voudrais également remercier toutes les personnes qui m'ont aidé, de près ou de loin, à résoudre mes multiples problèmes et questions (méta) physiques. Merci à Yohan Désières, Roch Espiau de Lamaestre et Renaud Bachelot pour leur éclairage sur les plasmons, à Serge Gidon pour son aide lors de mes simulations et à Alexandre Lagrange pour son expérience en lithographie. Un merci tout particulier à Sergei Kostcheev et Régis Deturche pour avoir été toujours disponibles pour pallier tous mes petits pépins de manips et cela de 8h à 20h non stop !

Merci à Ludovic Poupinet de m'avoir supportée au jour le jour, pour sa bonne humeur, ses conseils mais aussi pour ses magnifiques tableaux...avoir son bureau dans une galerie de peinture, ça n'arrive pas tous les jours !

Merci aussi à tous ceux que je n'ai pas cité, mais que je n'ai pas pour autant oubliés et qui ont, que ce soit à Grenoble ou à Troyes, contribué à ce que ma thèse se passe le mieux possible, aussi bien d'un point de vue logistique, scientifique ou tout simplement humain.

Enfin, je tiens à remercier mes parents et ma soeur pour leur soutien et l'intérêt qu'ils ont porté à mes travaux, même s'il faut bien l'avouer, tout le monde ne comprenait pas toujours tout ! Un merci tout particulier à toi, Papa, pour m'avoir donné goût à la physique et à l'optique : finalement, c'est grâce à tes "petites expériences de physique amusantes" que j'en suis arrivée là... Pour terminer, je voudrais remercier mon petit mari, qui, au long de ces trois ans a toujours su trouver les mots pour m'encourager et me redonner confiance. Merci !

# Résumé

La réduction des dimensions des composants en microélectronique impose d'améliorer constamment la résolution ultime des dispositifs de lithographie. Cependant, ces évolutions deviennent de plus en plus difficiles et coûteuses à mettre en oeuvre et pourraient favoriser l'apparition de techniques de lithographie alternatives, comme la lithographie assistée par plasmons de surface. L'objectif de cette thèse a consisté à évaluer les performances, les contraintes et par conséquent les applications possibles et les conditions d'utilisation de cette nouvelle technique. En se focalisant sur les propriétés intrinsèques des films minces métalliques, deux approches complémentaires ont ainsi été développées : la génération d'un champ d'interférences plasmonique a tout d'abord conduit à l'impression, dans une couche de résine photosensible, de motifs relativement complexes mais de résolution limitée ; La réalisation d'une lithographie haute résolution assistée par plasmons de surface a ensuite été abordée à travers la conception d'une nanosource optique compacte et efficace, la géométrie obtenue pouvant également être adaptée pour générer des motifs arbitraires ou réaliser une source accordable en longueur d'onde. Les différents résultats indiquent que cette technique de champ proche bas coût serait particulièrement bien appropriée à des besoins de lithographie ponctuels et/ou spécifiques, mais que les systèmes étudiés pourraient aussi être utilisés pour d'autres applications, comme le stockage optique par exemple.

# Abstract

The reduction of the components dimensions in microelectronics requires a constant improvement of the lithography tools resolution. However, these evolutions become more and more difficult and expensive to operate and could facilitate the appearance of alternative lithography techniques, such as surface-plasmon-assisted lithography. The objective of this Ph.D consists in estimating the performances, the constraints and thus the possible applications and using conditions of this new technique. By focusing on the intrinsic properties of thin metallic films, two complementary approaches were developed. First, the generation of a plasmonic interference field led to print relatively complex but resolution-limited patterns in a photosensitive resist. Then, the realization of highly resolved surface-plasmon-assisted lithography was studied through the conception of a compact and efficient optical nanosource, which geometry can also be adapted to generate arbitrary patterns or to realize a wavelength-accordable source. The results indicate that this near-field and low cost technique would be particularly well-appropriate for specific needs in lithography and that the proposed systems could also be used for other applications, such as optical data storage for example.

# Table des matières

<b>Résumé</b>	<b>v</b>
<b>Abstract</b>	<b>vi</b>
<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Plasmons et lithographie</b>	<b>3</b>
1.1 Introduction à la lithographie . . . . .	3
1.2 Généralités sur les plasmons de surface . . . . .	6
1.3 Etat de l'art de la lithographie par plasmons de surface . . . . .	13
1.4 Conclusions . . . . .	20
<b>2 Lithographie de motifs complexes par interférence de plasmons de surface</b>	<b>21</b>
2.1 Principe . . . . .	21
2.2 Etude théorique . . . . .	23
2.3 Réalisation expérimentale . . . . .	38
2.4 Résultats . . . . .	42
2.5 Conclusions . . . . .	46
<b>3 Lithographie haute résolution point par point assistée par plasmons de surface</b>	<b>49</b>
3.1 Principe . . . . .	49
3.2 Structure de base . . . . .	51
3.3 Vers une nanosource compacte et efficace . . . . .	61
3.4 Conclusions . . . . .	72
<b>4 Applications et perspectives de la lithographie plasmonique</b>	<b>75</b>
4.1 Vers la réalisation de motifs arbitraires : exemple de l'impression de motifs en parallèle . . . . .	75
4.2 Vers une adaptation de la longueur d'onde : exemple de la microélectronique . .	84
4.3 Vers d'autres horizons . . . . .	91
4.4 Conclusions . . . . .	92
<b>Conclusion générale</b>	<b>93</b>



<b>Bibliographie</b>	<b>96</b>
<b>Annexes</b>	<b>103</b>
<b>A Calcul des caractéristiques des plasmons de surface</b>	<b>103</b>
A.1 Relation de dispersion . . . . .	103
A.2 Distances de propagation des plasmons . . . . .	108
<b>B Codes de calcul pour l'optimisation du design de la nanosource à miroirs de Bragg</b>	<b>111</b>
B.1 Fichier principal de lancement de l'optimisation . . . . .	111
B.2 Extraction des caractéristiques du spot lumineux à partir du calcul FEM de la structure . . . . .	112
B.3 Calcul de la structure par le logiciel Comsol . . . . .	113
B.4 Définition de la fonction gaussienne . . . . .	116
B.5 Calcul des résidus pour la modélisation de données par une gaussienne . . . . .	117
B.6 Calcul de la fonction de mérite pour l'optimisation . . . . .	117
<b>C Codes de calcul pour l'optimisation du profil de la cavité en trois dimensions</b>	<b>119</b>
C.1 Fichier principal de lancement de l'optimisation . . . . .	119
C.2 Extraction des caractéristiques du spot lumineux à partir du calcul FEM de la structure . . . . .	120
C.3 Calcul de la structure par le logiciel Comsol . . . . .	121
C.4 Calcul analytique du profil initial ovale . . . . .	124
C.5 Calcul des coefficients de Fourier du contour ovale . . . . .	125
C.6 Calcul du profil de la cavité en fonction des coefficients de Fourier . . . . .	125
C.7 Définition de la fonction gaussienne . . . . .	126
C.8 Calcul des résidus pour la modélisation de données par des gaussiennes . . . . .	126
C.9 Calcul de la fonction de mérite pour l'optimisation . . . . .	126

# Introduction

Les circuits intégrés et les transistors sont présents de manière universelle dans les objets de la vie quotidienne, de l'ordinateur aux appareils électroménagers, du téléphone portable et des produits "high-tech" aux équipements médicaux. Or, depuis maintenant plusieurs dizaines d'années, l'industrie de la microélectronique à la base de la fabrication de ces composants cherche continuellement à améliorer leurs performances. Cela passe notamment par une miniaturisation de ces dispositifs, dans le but d'une part d'augmenter leur rapidité et d'autre part de réduire leur consommation et leur coût de production.

La photolithographie, technique qui permet de définir les motifs qui composent ces circuits, est donc au coeur de ces développements et fait ainsi l'objet de constantes recherches visant à améliorer la résolution de ces motifs. A partir des dispositifs classiques de lithographie optique par projection actuellement utilisés, plusieurs voies ont été explorées afin d'atteindre cet objectif. On peut citer notamment la diminution de leur longueur d'onde d'utilisation ou encore l'augmentation de leur ouverture numérique. Cependant, la complexité associée à ces différentes évolutions pourrait également favoriser l'apparition de nouvelles techniques de lithographie alternatives, comme celle qui fait l'objet de cette thèse.

Les plasmons de surface, découverts au début du 20<sup>ème</sup> siècle, ont en effet récemment attiré l'attention de la communauté scientifique, en particulier grâce à l'observation en 1998 par T. Ebbesen d'une transmission extraordinaire à travers des réseaux de trous sub-longueur d'onde. En 2004, X. Luo a ainsi envisagé d'utiliser le caractère sub-longueur d'onde de ces ondes électromagnétiques de surface afin de réaliser en lithographie des motifs de haute résolution et a alors effectué une première démonstration expérimentale de cette technique. L'objectif de cette thèse est de partir de ces premiers travaux et d'établir quelles sont les performances et les contraintes associées à ce nouveau procédé, ce qui permettra ensuite de déterminer quelles applications peuvent être visées par celui-ci et quelles conditions sont nécessaires à sa mise en oeuvre.

Peu de recherches ayant été effectuées à ce sujet (la plupart des articles cités dans ce manuscrit datent des dix, voire des cinq dernières années), l'étude que nous avons réalisée a été menée d'un point de vue plutôt exploratoire. Deux approches complémentaires ont ainsi été développées. Après un premier chapitre consacré à l'introduction des concepts liés aux plasmons et à la lithographie, nous verrons en effet dans le second chapitre que la génération d'un champ d'interférences plasmonique peut conduire à l'impression de motifs variés dans une couche de résine photosensible et ainsi constituer un premier pas vers une lithographie bas coût de motifs

complexes. Le chapitre trois abordera ensuite le problème de la résolution relative à ce genre de technique, notamment à travers la conception d'une nanosource optique efficace assistée par plasmons de surface. Enfin, le dernier chapitre de ce manuscrit élargira cette étude vers les différentes adaptations et applications possibles des dispositifs plasmoniques, dans le cadre mais aussi en dehors du domaine de la lithographie.

# Chapitre 1

## Plasmons et lithographie

Le but de ce chapitre est de situer plus précisément le contexte de cette thèse et d'introduire plusieurs généralités concernant les plasmons et la lithographie. Après un bref rappel des principes de cette technique, nous donnerons donc quelques définitions et caractéristiques des plasmons de surface. Puis, nous détaillerons différents dispositifs utilisés actuellement pour la réalisation de lithographie assistée par plasmons.

### 1.1 Introduction à la lithographie

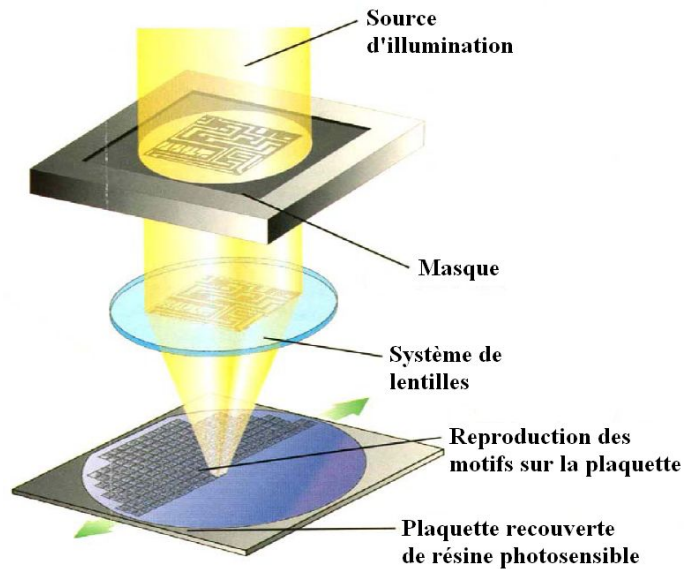
La lithographie est un procédé technologique qui permet d'imprimer des motifs dans un matériau photosensible. Cette technique est donc très utilisée aussi bien dans les laboratoires académiques que dans l'industrie dès qu'il s'agit de structurer la matière à des échelles micro-niques et nanométriques. Cependant, la majorité des recherches effectuées à ce sujet touchent le domaine de la microélectronique, où cette technologie intervient à très grande échelle pour définir les zones autour desquelles les composants constituant les circuits intégrés vont être fabriqués. Ainsi, c'est dans ce cadre que nous allons introduire les grandes étapes de ce procédé.

#### 1.1.1 Principe

Il existe de nombreuses techniques de lithographie, chacune exploitant différents processus. La lithographie électronique met par exemple en jeu un faisceau d'électrons pour structurer point par point la matière, tandis que la nano-impression utilise des moules structurés pour obtenir par pressage une réplique des motifs qu'ils contiennent dans un matériau polymère. Dans le cas particulier de l'élaboration de composants en microélectronique, la technique la plus employée reste toutefois la lithographie optique par projection, dont nous allons détailler le principe.

Ce procédé consiste à éclairer le matériau que l'on souhaite structurer (ici une couche de résine photosensible) à travers un masque où sont définis les motifs à imprimer. Comme le montre la figure 1.1, l'illumination de ce masque génère alors une image qui est projetée au niveau de la couche de résine par un système complexe de lentilles, système qui permet de transférer sans contact les motifs présents sur ce masque à la surface du polymère. Celui-ci réalise également une homothétie de ces motifs de manière à ce que leur dimension dans la couche photosensible soit inférieure (avec un facteur de réduction de l'ordre de 4 à 5) à leur taille initiale sur le masque.

FIG. 1.1: Schéma de principe de la lithographie optique par projection. L'illumination du masque génère une image des motifs qu'il contient qui est ensuite projetée au niveau de la couche de résine photosensible par un système de lentilles.



Cette dernière caractéristique est importante, puisqu'elle permet d'utiliser un masque contenant des motifs cinq fois plus grands que ceux que l'on souhaite imprimer, plus facile à fabriquer avec un minimum de défauts.

Cette étape d'insolation est ensuite suivie d'une étape de développement qui a pour but de révéler les motifs imprimés. En effet, le caractère photosensible de la résine fait que son illumination à travers le masque induit des modifications chimiques locales de celle-ci dans les zones qui ont été éclairées, changements qui se traduisent par l'apparition de différences de solubilité au sein de la couche. L'attaque chimique de celle-ci par un développeur conduit ainsi à éliminer les zones de résine qui ont (dans le cas d'une résine positive) ou n'ont pas (dans le cas d'une résine négative) été exposées et fait donc apparaître ces motifs. Ceux-ci peuvent alors servir de masques de base pour les étapes de fabrication suivantes, comme la gravure par exemple.

### 1.1.2 Performances et limites

Les performances d'une technique de lithographie sont ensuite essentiellement déterminées par la taille minimale des motifs que l'on peut imprimer dans le matériau photosensible. Dans le cas de la lithographie optique présentée au paragraphe précédent, cette dimension correspond à la distance minimale devant séparer deux motifs pour que ceux-ci soit résolus individuellement : c'est la limite de résolution. La figure 1.2 illustre ce concept.

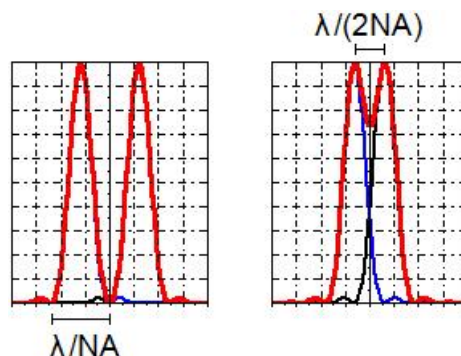


FIG. 1.2: Illustration du concept de résolution selon le critère de Rayleigh. A gauche : tâche image de deux points objets isolés. A droite : tâche image de deux points objets à la limite de résolution.

Considérons deux points objets que l'on observe à travers un système d'imagerie d'ouverture numérique  $NA = n \sin(\theta)$ , où  $n$  est l'indice du milieu d'imagerie et  $\theta$  est le demi-angle d'ouverture de l'optique correspondante. La tâche de diffraction image associée à chacun de ces objets pris séparément possède alors une largeur  $d = \lambda/NA$ , avec  $\lambda$  la longueur d'onde d'illumination (image de gauche de la figure 1.2). Or, d'après le critère de Rayleigh, ces objets seront résolus lorsque le maximum principal de la tâche image du premier point se superpose au minimum au premier minimum nul de la tâche image du second (cas de l'image de droite de la figure 1.2). Par conséquent, la distance minimale devant séparer les deux maxima principaux des tâches images de ces objets, c'est-à-dire la résolution, correspond à :

$$R = \frac{\lambda}{2NA} \quad (1.1)$$

Depuis maintenant plusieurs dizaines d'années, la concurrence internationale omniprésente en microélectronique pousse cette industrie à continuellement améliorer les performances des composants qu'elle fabrique. Cela passe notamment par la réduction des dimensions de ces dispositifs, technique qui permet d'augmenter leur rapidité et de minimiser leur consommation ainsi que leur coût de production. Cependant, cette course à la miniaturisation impose également d'améliorer constamment la résolution ultime  $R$  des dispositifs de lithographie nécessaires à la fabrication de ces composants. Concernant les techniques de lithographie optique, ce challenge a donc été mené à bien ces dernières décennies à la fois par le biais d'une diminution de la longueur d'onde d'illumination  $\lambda$  (qui atteint aujourd'hui l'extrême ultra-violet) et par une augmentation de l'ouverture numérique  $NA$  des dispositifs d'insolation (en ajoutant notamment un fluide haut indice en sortie des lentilles de projection). Toutefois, ces évolutions deviennent de plus en plus difficiles et coûteuses à mettre en oeuvre et pourraient favoriser l'apparition de techniques de lithographie alternatives, comme la lithographie plasmonique.

En effet, la limite de résolution définie par l'expression (1.1) correspond au cas où des ondes propagatives sont utilisées pour insoler la couche de résine photosensible. Cependant, la mise en jeu d'autres types d'ondes pour effectuer cette étape de lithographie pourrait permettre de dépasser ce critère et d'augmenter la résolution des motifs imprimés. C'est le cas par exemple des plasmons. Comme nous allons le voir dans la suite, ces ondes électromagnétiques excitées et localisées à l'interface entre un métal et un diélectrique possèdent en effet de fortes fréquences spatiales. L'utilisation du champ qui leur est associé pour insoler des couches de résines photosensibles pourrait donc permettre d'effectuer en champ proche l'impression de motifs de très faibles dimensions et ainsi répondre au problème de résolution rencontré actuellement par l'industrie de la microélectronique. Néanmoins, l'introduction de ces ondes de surface dans le domaine de la lithographie reste très récent (la plupart des articles cités dans ce manuscrit datent des dix, voire des cinq dernières années) et les recherches réalisées à ce sujet n'ont été menées pour le moment que pour quelques exemples spécifiques. L'objectif de cette thèse consiste donc à évaluer de manière plus générale les performances et les contraintes liées à l'insertion des plasmons en lithographie. Celles-ci nous permettront alors dans un second temps de déterminer quelles sont les conditions d'utilisation et les applications possibles de cette nouvelle technique.

Dans la suite de ce chapitre, nous allons tout d'abord nous intéresser aux caractéristiques des ondes électromagnétiques particulières que constituent les plasmons. Puis, nous dresserons

un état de l'art des différentes configurations mises en oeuvre jusqu'à présent pour effectuer une lithographie assistée par plasmons de surface.

## 1.2 Généralités sur les plasmons de surface

Nous allons dans cette partie donner quelques définitions et généralités sur les plasmons et leur propriétés, ce qui nous conduira ensuite à énoncer brièvement les spécificités liées à l'utilisation de ceux-ci pour la lithographie.

### 1.2.1 Définitions

- Plasmon de volume : dans un métal décrit par le modèle de Drude (c'est-à-dire dans lequel on ne tient compte que des électrons de la bande de conduction et des transitions intrabandes), les électrons sont traités comme un gaz. Ce gaz est susceptible d'oscillations longitudinales de densité de charge appelées oscillations de plasma, dont le quantum associé est appelé *plasmon de volume* [1].

- Plasmon de surface localisé : lorsque des objets métalliques sont éclairés par une onde de longueur d'onde grande devant leur taille, ce champ incident entretient une oscillation collective des électrons de conduction à l'intérieur de ces objets. Ces électrons possèdent alors la propriété d'être confinés et de se déplacer en phase. Lorsque leur réponse est déphasée de  $\pi/2$  par rapport au champ excitateur, on observe une exaltation locale de champ dans l'objet métallique, qui correspond à l'excitation d'un *plasmon de surface localisé* [2].

- Plasmon de surface délocalisé : l'illumination d'un film métallique peut provoquer, sous certaines conditions qui seront détaillées au paragraphe suivant, des oscillations locales de la densité électronique de celui-ci. Ces oscillations donnent naissance à des ondes électromagnétiques qui se propagent le long de la surface du métal et qui sont appelées *plasmons de surface délocalisés*.

Ces trois définitions montrent bien la distinction qui existe entre les plasmons dits de volume et les plasmons de surface. En effet, à la différence des plasmons de volume qui résultent uniquement de l'oscillation de charges, les plasmons de surface sont issus d'une forte interaction entre des oscillations de charge d'une part et un champ électromagnétique incident d'autre part. C'est pourquoi, ces ondes sont souvent également appelées "surface plasmon polaritons" (SPP).

### 1.2.2 Caractéristiques des plasmons de surface délocalisés

Nous venons de voir que les plasmons de surface délocalisés sont des ondes électromagnétiques qui se propagent à la surface des métaux. La résolution des équations de Maxwell pour ce type d'onde permet alors de donner quelques unes de leurs caractéristiques [3]. Pour plus de clarté, nous ne donnerons ici que les principaux résultats qui découlent de ces calculs, les étapes intermédiaires étant regroupées en annexe.

### 1.2.2.1 Relation de dispersion

Il s'agit de résoudre les équations de Maxwell au niveau d'une interface métal/diélectrique et de trouver les caractéristiques relatives à des solutions localisées au niveau de cette interface (plasmons). Ce calcul peut au premier abord apparaître relativement délicat puisque les matériaux mis en jeu (métal et diélectrique) possèdent des propriétés physiques très différentes. En particulier, le métal supporte des courants à sa surface, ce qui n'est pas le cas du diélectrique. Cependant, nous allons montrer que cette différence peut être incluse dans la permittivité de chaque matériau, conduisant ainsi à la résolution d'une seule et même équation d'onde de part et d'autre de l'interface métal/diélectrique.

Prenons un milieu linéaire, homogène, isotrope et non magnétique. On a pour le champ électrique  $\vec{E}$  :

$$\text{rot}(\text{rot}\vec{E}) = \text{grad}(\text{div}\vec{E}) - \Delta\vec{E}$$

Or, la densité volumique de charges est nulle dans un métal. De même, nous considérerons que le diélectrique utilisé ne contient pas de charges. Au niveau de l'interface métal/diélectrique étudiée, la divergence de  $\vec{E}$  est donc nulle et l'équation précédente se simplifie selon :

$$\text{rot}(\text{rot}\vec{E}) = -\Delta\vec{E}$$

De plus, les équations de Maxwell permettent d'écrire :

$$\text{rot}(\text{rot}\vec{E}) = -\frac{\partial}{\partial t} \left( \mu_0 \vec{j} + \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial \varepsilon_r \vec{E}}{\partial t} \right)$$

où  $\mu_0$ ,  $\varepsilon_0$  et  $\varepsilon_r$  sont respectivement la perméabilité du vide et les permittivités du vide et relative du milieu considéré et où  $\vec{j} = \sigma \vec{E}$  est la densité de courant ( $\sigma$  étant la conductivité diélectrique). Même si les courants n'existent que dans le cas du métal, cette dernière relation peut également s'appliquer au cas du diélectrique en posant  $\sigma = 0$  et reste donc valable sur toute l'interface.

On choisit ici une dépendance temporelle des ondes électromagnétiques en  $\exp(-i\omega t)$ . Après calcul, on obtient alors :

$$\text{rot}(\text{rot}\vec{E}) = \frac{\omega^2}{\varepsilon_0 \mu_0} \left( \varepsilon_r + i \frac{\sigma}{\omega \varepsilon_0} \right) \vec{E}$$

ce qui permet finalement d'aboutir à une équation d'onde unique :

$$\Delta\vec{E} + \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon_n \vec{E} = 0 \quad (1.2)$$

$$\text{avec} \quad \begin{cases} \varepsilon_n = \varepsilon(\omega) = \varepsilon_r + i \frac{\sigma}{\omega \varepsilon_0} & \text{dans le métal} \\ \varepsilon_n = \varepsilon_1 = \varepsilon_r & \text{dans le diélectrique} \end{cases}$$

L'unicité de cette équation, valable aussi bien dans le métal que dans le diélectrique, est intéressante, puisqu'elle permet de rechercher des solutions de formes identiques de part et d'autre de cette interface. La figure 1.3 donne alors quelques notations que l'on retrouve dans les calculs qui suivent.



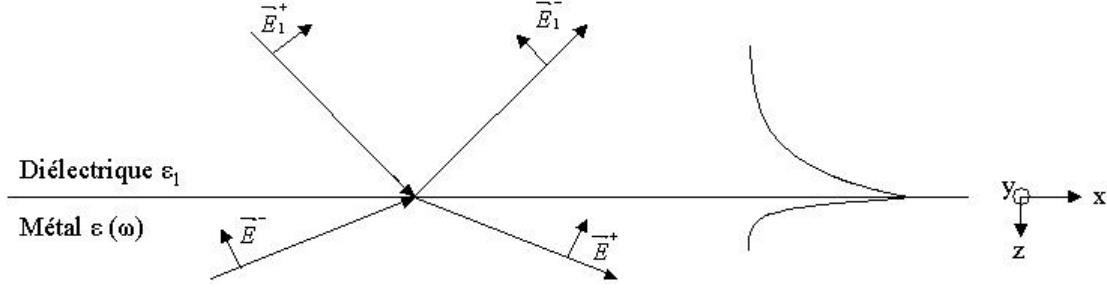


FIG. 1.3: **Champ électromagnétique sur une interface diélectrique/métal.** A gauche : notations. Les variables relatives au diélectrique, de constante diélectrique  $\varepsilon_1$ , sont suivies de l'indice 1. Les variables relatives au métal, de constante diélectrique  $\varepsilon(\omega)$ , ne possèdent pas d'indice. A droite : allure schématique du champ magnétique des plasmons associés à cette interface (coupe selon  $z$ ).

Nous allons rechercher des solutions de type ondes planes, se propageant dans le plan ( $xOy$ ) de l'interface métal/diélectrique et localisées sur cette interface, c'est-à-dire décroissant exponentiellement de part et d'autre de celle-ci. Ces solutions sont donc de la forme :

$$\vec{E}_n(\vec{r}) = \vec{E}_n(z) \exp(ik_x x) \quad \text{avec} \quad \vec{E}_n(z) = \vec{E}_n^+ \exp(-K_n z) + \vec{E}_n^- \exp(K_n z)$$

et

$$\begin{cases} K_n = K > 0 & \text{dans le métal} \\ K_n = K_1 > 0 & \text{dans le diélectrique} \end{cases}$$

Cependant, ces solutions étant bornées, le champ électromagnétique qui leur est associé est nul à l'infini. En posant  $k_0 = \omega/c = 2\pi/\lambda$ , les seules solutions acceptables sont alors :

- dans le diélectrique :

$$z < 0 \quad \text{donc} \quad \vec{E}_n(\vec{r}) = \vec{E}_1(\vec{r}) = \vec{E}_1^- \exp(K_1 z) \exp(ik_x x) \quad \text{avec} \quad K_1^2 = \varepsilon_1 k_0^2 - k_x^2$$

- dans le métal :

$$z > 0 \quad \text{donc} \quad \vec{E}_n(\vec{r}) = \vec{E}(\vec{r}) = \vec{E}^+ \exp(-K z) \exp(ik_x x) \quad \text{avec} \quad K^2 = \varepsilon(\omega) k_0^2 - k_x^2$$

Une allure schématique du champ magnétique associé à ces solutions est représentée sur la figure 1.3 et montre effectivement une décroissance exponentielle de celui-ci de part et d'autre de l'interface métal/diélectrique. La résolution de l'équation d'onde (1.2) pour ces solutions (voir annexe) conduit finalement à la relation de dispersion des plasmons :

$$\frac{\varepsilon_1}{K_1} + \frac{\varepsilon(\omega)}{K} = 0 \tag{1.3}$$

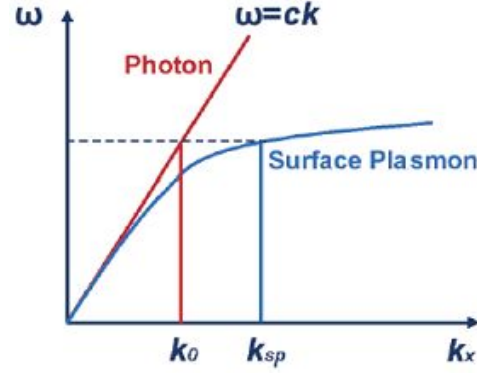
qui peut également se réécrire sous la forme plus connue :

$$k_x = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon(\omega)}} \tag{1.4}$$

Plusieurs remarques peuvent alors être effectuées concernant cette relation de dispersion, permettant notamment de donner quelques caractéristiques des ondes de surface particulières que sont les plasmons. En effet, les calculs montrent par exemple que cette relation n'est valable que

pour les composantes  $x$  et  $z$  des solutions de l'équation d'onde. Celles-ci n'auront donc pas de composantes  $y$  : les plasmons possèdent la propriété d'être dans le plan d'incidence, c'est-à-dire polarisés TM (transverse magnétique). De même, il apparaît que ces expressions ne sont vérifiées que si  $\varepsilon(\omega) < 0$  et  $\varepsilon(\omega) < \varepsilon_1$ . Enfin, le tracé qualitatif de cette relation de dispersion est donné sur la figure 1.4. Pour comparaison, la courbe de dispersion d'une onde lumineuse progressive dans un milieu homogène est également présentée.

FIG. 1.4: **Tracé qualitatif de la relation de dispersion des plasmons** [4]. La relation de dispersion des photons dans un milieu diélectrique homogène est donnée en comparaison (courbe rouge). On note que la courbe de dispersion des plasmons (courbe bleue) est toujours en dessous de celle des photons.



On remarque que la courbe de dispersion des plasmons est toujours en dessous de celle des photons. A une énergie donnée, la projection du vecteur d'onde des plasmons selon  $x$  ( $k_{sp}$  sur la figure) est donc toujours plus grande que celle de l'onde lumineuse correspondante  $k_0$ . Ce tracé indique également que la courbe de dispersion des plasmons tend vers une asymptote horizontale pour les forts vecteurs d'onde, ce qui signifie que ces ondes peuvent potentiellement avoir des fréquences spatiales extrêmement fortes. Cette caractéristique montre ainsi leur intérêt pour la lithographie : l'utilisation du champ des plasmons pour insoler une couche de résine photosensible permettrait de repousser la limite de résolution obtenue pour une onde lumineuse propagative et conduirait à l'impression de motifs largement sub-longueur d'onde.

### 1.2.2.2 Distances de propagation

La détermination du vecteur d'onde des plasmons par la relation de dispersion (1.4) donne également accès à d'autres caractéristiques des plasmons, notamment à leur distance de propagation le long de l'interface métal/diélectrique et à leur distance d'atténuation perpendiculairement à cette interface. En effet, la distance d'atténuation des plasmons perpendiculairement à l'interface métal/diélectrique  $\delta_{\perp}$ , souvent plus connue sous le nom d'effet de peau, correspond à la distance au bout de laquelle l'amplitude du champ électrique a été divisée par  $e$  soit :

$$\delta_{\perp} = \frac{1}{K_n}$$

On obtient alors les expressions suivantes :

- dans le métal :

$$\delta_{\perp \text{ métal}} = \frac{\lambda}{2\pi} \sqrt{\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon(\omega)}{\varepsilon^2(\omega)}}$$

- dans le diélectrique :

$$\delta_{\perp \text{ diélectrique}} = \frac{\lambda}{2\pi} \sqrt{\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon(\omega)}{\varepsilon_1^2}}$$

De même, la distance de propagation des plasmons le long de l'interface correspond au libre parcours moyen et est donnée par  $1/2k_x''$  avec  $k_x''$  tel que  $k_x = k_x' + ik_x''$ .

Posons  $\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega)$ . Dans le cas où  $|\varepsilon''(\omega)| \ll |\varepsilon'(\omega)|$ , les calculs donnés en annexe montrent alors :

$$k_x' = k_0 \left( \frac{\varepsilon_1 \varepsilon'(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega)} \right)^{1/2}$$

$$k_x'' = k_0 \left( \frac{\varepsilon_1 \varepsilon'(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega)} \right)^{3/2} \frac{\varepsilon''(\omega)}{2(\varepsilon'(\omega))^2}$$

Comme nous le verrons dans le dernier chapitre de ce manuscrit, ces distances peuvent varier de plusieurs ordres de grandeur (du nanomètre au millimètre) selon les matériaux et la longueur d'onde utilisés. Cependant, dans le cas de l'excitation de plasmons dans le visible au niveau d'une interface argent/résine photosensible, configuration que nous retrouverons souvent dans la suite, ces distances de propagation (le long de l'interface) et d'atténuation (dans la résine) sont respectivement de l'ordre de quelques microns et de plusieurs dizaines de nanomètres.

### 1.2.2.3 Excitation

Nous avons vu que les plasmons de surface délocalisés sont des solutions particulières des équations de Maxwell à l'interface entre un métal et un diélectrique et que ces ondes possèdent des propriétés intéressantes pour des applications en lithographie, notamment en terme de résolution. Cependant, ces ondes ne pourront effectivement être utilisées pour cette technologie qu'à condition d'être excitées au voisinage de ce type d'interface, via par exemple une onde lumineuse incidente. Cette excitation n'est possible que s'il existe un accord entre les composantes des vecteurs d'onde de ces deux entités. Or, le tracé des relations de dispersion figure 1.4 montre que la composante selon  $x$  du vecteur d'onde des photons dans un milieu diélectrique homogène est toujours inférieure à celle des plasmons. L'excitation de ces derniers par la lumière ne se fera donc qu'à condition d'augmenter la composante selon  $x$  du vecteur d'onde des photons. Plusieurs méthodes peuvent être employées. Nous allons ici détailler deux d'entre-elles, celles les plus classiquement utilisées pour l'excitation optique de plasmons de surface.

A une fréquence donnée, on a pour les photons :

$$\omega = c\sqrt{k_x^2 + k_z^2} \quad \text{constant}$$

Or, une onde lumineuse évanescence selon  $z$  possède un  $k_z$  imaginaire. Une de ces méthodes consiste alors à envoyer une onde lumineuse évanescence sur le film métallique.  $\omega$  étant constant, cela revient à augmenter la composante selon  $x$  du vecteur d'onde des photons et donc à abaisser la courbe de dispersion de ceux-ci de manière à ce qu'elle coupe celle des plasmons.

La génération de cette onde évanescence s'effectue en éclairant le métal à travers un prisme haut indice et avec un angle d'incidence supérieur à l'angle limite de réflexion totale. La figure 1.5 montre ainsi deux configurations possibles pour ce type d'excitation : dans la configuration de Kretschmann-Raether (à gauche), le prisme est mis en contact avec le film métallique et permet d'exciter des plasmons en face inférieure de celui-ci par l'intermédiaire de l'onde évanescence transmise à travers le métal. La configuration d'Otto (à droite) laisse un mince film d'air entre

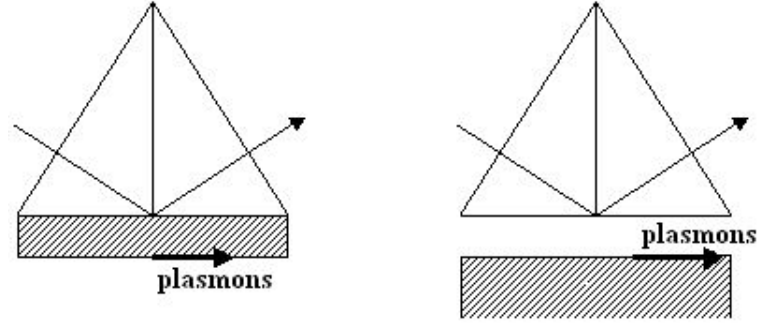


FIG. 1.5: Configurations possibles pour l'excitation de plasmons sur un film métallique par l'envoi d'une onde lumineuse évanescente issue d'un prisme haut indice. Le schéma de gauche représente la configuration de Kretschmann-Raether où le prisme est en contact avec le film de métal (hachures). Les plasmons sont excités en face inférieure du film par l'onde évanescente transmise à travers celui-ci. Le schéma de droite montre la configuration d'Otto où le prisme et le film de métal sont séparés par un mince film d'air. Les plasmons sont générés en face supérieure du film métallique par l'onde évanescente ayant franchi l'espace d'air.

le prisme et le film métallique et conduit à l'excitation de plasmons en face supérieure de ce dernier grâce à l'onde évanescente ayant franchi l'espace d'air.

D'un point de vue mathématique, l'excitation des plasmons aura effectivement lieu par ces méthodes lorsque l'onde lumineuse incidente sera telle que :

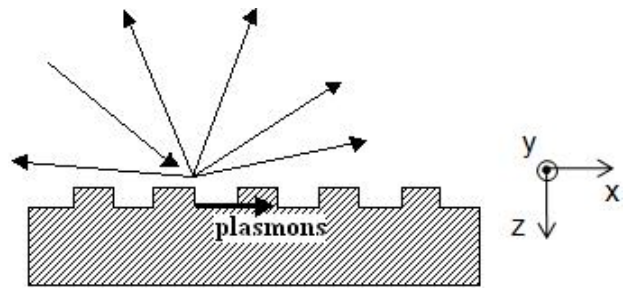
$$k_{x\text{incident}} = k_{x\text{plasmon}} \quad \text{avec} \quad k_{x\text{incident}} = k_0 \sqrt{\varepsilon_{\text{prisme}}} \sin(\theta_{\text{incident}})$$

$$k_{x\text{plasmon}} = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_{\text{diélectrique}} \varepsilon'_{\text{métal}}(\omega)}{\varepsilon_{\text{diélectrique}} + \varepsilon'_{\text{métal}}(\omega)}}$$

où on a ici pris la convention :  $\varepsilon_{\text{métal}}(\omega) = \varepsilon'_{\text{métal}}(\omega) + i\varepsilon''_{\text{métal}}(\omega)$ .

Un autre moyen d'augmenter la composante selon  $x$  du vecteur d'onde de l'onde lumineuse incidente est représenté sur la figure 1.6.

FIG. 1.6: Schématisation du montage permettant d'exciter des plasmons à la surface d'un film métallique par l'ajout d'un élément diffractant. L'élément diffractant augmente la composante selon  $x$  du vecteur d'onde de l'onde lumineuse incidente de manière à ce qu'elle atteigne celle du vecteur d'onde des plasmons. Ceux-ci sont alors excités en face supérieure du film métallique.



Il consiste à ajouter un élément diffractant dans le système tel que :

$$k_{x\text{incident}} = k_{x\text{plasmon}} \quad \text{avec} \quad k_{x\text{incident}} = k_{x\text{photon}} + k_{x\text{élément}}$$

$$\text{et} \quad k_{x\text{plasmon}} = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_{\text{diélectrique}} \varepsilon'_{\text{métal}}(\omega)}{\varepsilon_{\text{diélectrique}} + \varepsilon'_{\text{métal}}(\omega)}}$$

L'avantage de cette méthode est qu'elle permet d'exciter des plasmons sur une interface métal/diélectrique en l'éclairant par le biais d'une onde lumineuse propagative. Les éléments

diffRACTANTS pouvant être insérés sont également variés (réseaux métalliques, ouvertures sub-longueur d'onde,...) et permettent d'adapter la technique d'excitation en fonction des différentes contraintes rencontrées (géométrie des dispositifs, type de détection,...). Cependant, ces éléments doivent aussi être dimensionnés de manière à favoriser l'excitation des plasmons. Dans le cas de l'utilisation de réseaux métalliques, la loi des réseaux indique par exemple que le pas  $a$  de ceux-ci doit être tel que :

$$\begin{aligned} k_{x\text{plasmon}} &= k_{x\text{photon}} + k_{x\text{réseau}} \\ &= k_0 \sqrt{\varepsilon_{\text{diélectrique}}} \sin(\theta_{\text{incident}}) + p \frac{2\pi}{a} \end{aligned}$$

où  $p$  est un entier. Toutefois, les faibles efficacités de diffraction des réseaux aux ordres élevés font que  $p$  est la plupart du temps égal à 1.

De même, la condition de continuité des champs  $E_x^{\text{incident}} = E_x^{\text{plasmons}}$  à l'interface montre que cette excitation ne sera possible que dans le cas où l'onde lumineuse incidente possède un champ électrique dont la composante parallèle à la direction de propagation des plasmons sur l'interface (c'est-à-dire  $x$ ) est non nulle. Pour une excitation des plasmons par le biais d'un réseau de lignes métallique, la génération de ces ondes sera ainsi maximale pour une onde lumineuse incidente polarisée perpendiculairement aux lignes du réseau, c'est-à-dire polarisée TM.

### 1.2.3 Application à la lithographie

Nous venons de détailler quelques caractéristiques et conditions d'excitation théoriques des plasmons de surface. Cependant, l'application de ces ondes au domaine de la lithographie n'est dans la pratique pas immédiate et nécessite quelques adaptations. Comme nous l'avons mentionné au début de ce chapitre, la technique de lithographie par plasmons consiste en effet à utiliser le champ électromagnétique qui leur est associé pour insoler la couche de résine photosensible. L'intérêt et l'originalité de cette technique réside dans l'emploi d'ondes de surface et du champ proche : celui-ci permet de repousser la limite de diffraction et constitue donc potentiellement une avancée majeure en terme de résolution. Néanmoins, ce caractère champ proche des plasmons implique également que ceux-ci ne pourront être exploités pour insoler une couche de résine photosensible qu'à condition d'instaurer une forte proximité entre les structures les générant et la couche de résine. De même, cette configuration nécessite aussi d'être en mesure d'exciter de manière efficace des plasmons au niveau d'une interface métal/résine photosensible, à des longueurs d'onde correspondant aux plages de sensibilité de ces polymères.

L'application des plasmons à la lithographie n'est donc possible qu'aux conditions suivantes :

- maintien d'un proche contact (distances typiquement inférieures à 10 nm) entre les structures générant les plasmons et la couche de résine photosensible. De nombreuses techniques sont possibles, dont la mise sous vide du système d'insolation, l'application d'une forte pression sur les deux éléments concernés, le dépôt de la résine directement sur les nanostructures, le contrôle de la distance par des techniques d'asservissement...

- excitation des plasmons à des longueurs d'onde visibles ou ultra-violettes (UV). Cette condition, ajoutée au fort indice de réfraction des résines photosensibles, restreint considérablement le champ des métaux utilisables ainsi que le mode d'excitation. Concernant tout d'abord les

métaux, nous verrons dans le dernier chapitre de ce manuscrit que l'argent reste dans le visible celui qui conduit à l'excitation de plasmons avec les plus grandes distances de propagation. La forte réactivité à l'air de ce matériau fait cependant de l'or un autre bon candidat. L'aluminium est ensuite un des seuls métaux à posséder une résonance plasmon aux longueurs d'onde UV actuellement utilisées en lithographie optique classique ( $\lambda = 193$  nm). Enfin, en ce qui concerne l'excitation des plasmons, l'indice de réfraction des couches de résine photosensible de l'ordre de 1.7 fait qu'il est souvent difficile de trouver des prismes d'indices suffisamment élevés pour une excitation par onde évanescente. L'excitation se fait donc la plupart du temps par l'intermédiaire d'éléments diffractants comme des réseaux ou des ouvertures sub-longueur d'onde.

Cette première partie nous a permis de donner quelques caractéristiques des ondes de surface que constituent les plasmons et de préciser les particularités relatives à l'insertion de ceux-ci en lithographie. Afin de situer plus précisément le contexte et l'environnement de recherche dans lequel s'inscrit cette thèse, nous allons maintenant décrire quelques exemples de dispositifs-types qui utilisent ces ondes afin de réaliser des motifs dans des couches photosensibles.

### 1.3 Etat de l'art de la lithographie par plasmons de surface

Plusieurs approches ont été étudiées pour la réalisation de lithographie par plasmons de surface. Celles-ci consistent à insoler et structurer une couche de résine photosensible par le biais de plasmons de surface localisés ou délocalisés, chacune de ces possibilités présentant des avantages et des inconvénients que nous allons détailler.

#### 1.3.1 Lithographie par plasmons de surface localisés

Deux types de techniques ont été exploités afin de générer des surintensités locales de champ et permettre une lithographie en champ proche. La plus simple consiste à exciter une singularité électromagnétique en bout d'une pointe métallique et a été largement employée pour nano-structurer point par point différentes couches polymères ou inorganiques. Une seconde méthode repose ensuite sur l'excitation de résonances plasmon localisées dans des nano-objets métalliques et conduit à l'impression de motifs dont la forme est plus ou moins complexe selon les modes de résonance mis en jeu.

##### 1.3.1.1 Lithographie par effet de pointe optique

L'effet de pointe est bien connu en électrostatique où il se traduit par une accumulation de charges à la surface d'objets métalliques de faibles rayons de courbure. De même, en électromagnétisme, l'illumination de pointes métalliques par un champ dont la polarisation est dirigée selon l'axe de la pointe peut conduire à l'excitation de singularités électromagnétiques [5]. Le confinement de champ associé permet alors de générer des nanosources optiques sans avoir à satisfaire de conditions de résonance électronique (comme dans le cas de l'excitation de plasmons de surface localisés par exemple) et a ainsi été fortement utilisé pour effectuer des lithographies en champ proche à des échelles parfois largement sub-longueur d'onde. La figure 1.7 présente quelques uns des résultats obtenus avec ce type de dispositifs [6], [7].

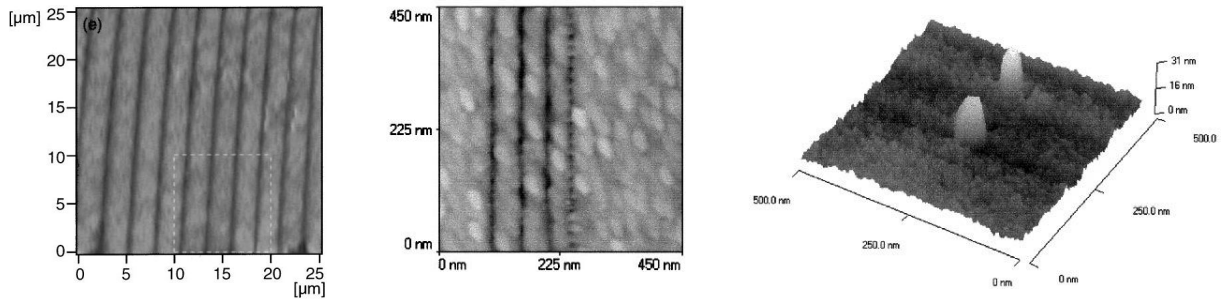


FIG. 1.7: **Résultats de lithographie point par point obtenus grâce à des pointes métalliques.** A gauche : Nanophotographie sur une résine positive obtenue par balayage avec une pointe de silicium recouverte de platine [6]. Au centre et à droite : structuration de couches d'or par une pointe de tungstène respectivement nue et recouverte d'argent. Les pointes utilisées ont des diamètres de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres [7].

A gauche, le balayage d'une pointe de silicium recouverte de platine au dessus d'une couche de résine photosensible conduit par exemple à l'impression de sillons de l'ordre de 200 nm de largeur qui résultent de l'exposition de la couche par le fort champ local généré en bout de pointe. La figure centrale montre ensuite un autre type d'effet obtenu au niveau d'une couche d'or balayée par une pointe de tungstène. Dans ce cas, l'interaction répulsive entre le dipôle créé en bout de pointe par l'éclairage de celle-ci et le dipôle relatif aux grains d'or constituant la surface du film a induit un déplacement des atomes d'or sous la pointe et formé des sillons à l'aplomb du passage de celle-ci. Enfin, l'image de droite donne un autre exemple de nanostructuration de la matière par effet de pointe optique. Il s'agit de plots d'argent déposés sur un film d'or par le biais d'une pointe de tungstène recouverte d'argent. L'illumination de la pointe a ici mis en résonance plasmon les agrégats d'argent situés à l'extrémité de celle-ci, entraînant leur échauffement, fusion partielle, puis redépôt au niveau du film placé à proximité. Cette technique réalise ainsi un dépôt contrôlé et photo-assisté d'agrégats métalliques.

L'utilisation des effets de pointe optique en nanolithographie est une approche relativement prometteuse puisqu'elle permet d'agir directement sur la couche à structurer, point par point, avec des résolutions d'autant meilleures que le rayon de courbure de la pointe mise en jeu est faible. Bien que cette technique soit pour le moment encore réservée à des applications plutôt académiques, beaucoup d'études sont en cours afin d'élargir son domaine d'action et améliorer son efficacité [8], [9], [10]. On peut par exemple citer à ce sujet les travaux de chercheurs d'IBM [11], qui, pour pallier les problèmes intrinsèques de vitesse d'écriture des techniques de lithographie point par point, ont développé un système adressant des milliers de pointes en parallèle ("millipede").

### 1.3.1.2 Lithographie au voisinage de nanoparticules

Nous avons vu précédemment que l'excitation de plasmons de surface localisés dans des objets métalliques sub-longueur d'onde (nanoparticules) correspondait à une exaltation de champ à l'intérieur de ceux-ci. Cependant, cette résonance entraîne également la formation d'un fort champ proche de type dipolaire autour de ces objets, phénomène qui a été mis à profit pour insoler une couche de résine photosensible. Les motifs imprimés correspondent alors à une image du champ proche généré.

Dans le cas de géométries simples (sphéroïdes, oblates, prolates), les propriétés plasmoniques des nanoparticules peuvent être décrites par des modèles analytiques issus de la théorie de Mie [12]. Celles-ci dépendent du matériau considéré, mais aussi de la forme et de l'environnement de la particule. Dans les cas plus complexes (nano-bâtonnets,...), seules des études numériques peuvent prévoir les résonances de tels objets. Cependant, l'exaltation de champ associée se construit toujours majoritairement selon la direction de polarisation de la lumière incidente. La figure 1.8 donne alors quelques exemples de lithographie réalisés autour de nanoparticules [13].

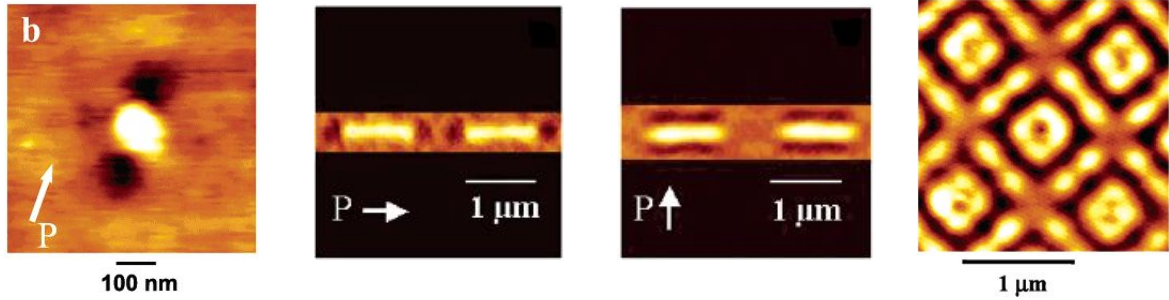


FIG. 1.8: **Résultats de lithographie effectués au voisinage de nanoparticules** [13]. A gauche : particule d'argent sphérique éclairée en polarisation linéaire. Au centre : nano-bâtonnet d'or éclairé selon deux directions de polarisation différentes. A droite : nanoparticules d'argent éclairées en polarisation circulaire. Les directions de polarisation sont indiquées par les flèches blanches.

Il s'agit d'images effectuées par microscopie à force atomique (AFM) sur des nanoparticules métalliques recouvertes de résine photosensible. Après exposition, la figure de gauche montre ainsi l'impression de deux lobes de part et d'autre d'une particule d'argent, dirigés selon la direction de polarisation incidente et qui correspondent à l'excitation d'un mode de résonance dipolaire de celle-ci. De même, les deux images centrales présentent le résultat de l'illumination d'un nano-bâtonnet d'or selon deux directions de polarisation différentes. Deux modes de résonance sont ici obtenus, conduisant chacun à des exaltations de champ autour d'un des deux axes principaux de la particule et se développant préférentiellement le long de la direction de la polarisation incidente. Enfin, l'exposition d'un réseau de nanoparticules d'argent par un champ de polarisation circulaire conduit à l'impression de motifs plus complexes, mais de symétrie toujours identique à celle de la polarisation incidente.

Ces exemples montrent comment le champ proche optique de nano-objets métalliques peut structurer la matière à une échelle bien plus faible que la longueur d'onde. D'autres types d'approches de lithographie utilisant ces nanoparticules métalliques ont également été récemment proposées [14], [15]. L'une d'elles, illustrée figure 1.9, effectue notamment un adressage contrôlé de nanoparticules métalliques contenues dans un réseau en les excitant sélectivement par un ajustement de paramètres simples liés au champ incident (direction du vecteur d'onde incident, état de polarisation).

Cette technique, présentée pour le moment au stade théorique, consiste essentiellement à contrôler localement les interférences (et donc la phase) au sein du réseau de particules de manière à en rendre certaines claires et d'autres sombres. Un grand nombre de combinaisons d'éclairages nanométriques sont ainsi possibles, permettant ensuite potentiellement de photofabriquer séquentiellement des motifs de formes variées.



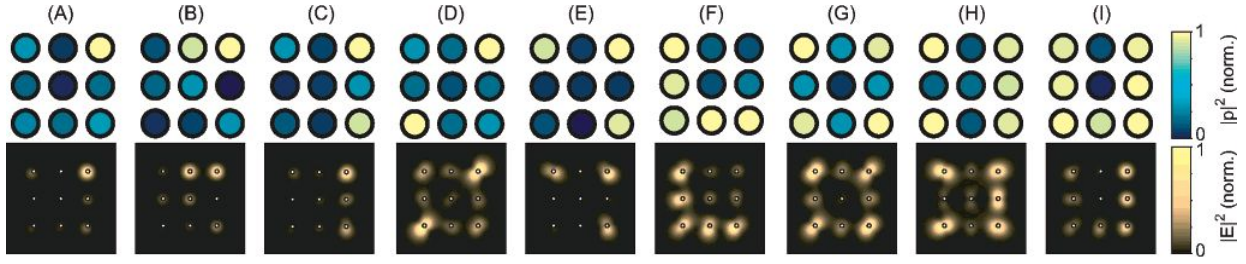


FIG. 1.9: Exemple de simulation de lithographie plasmonique programmable utilisant des nanoparticules métalliques [15]. Différentes combinaisons de particules d'argent sont excitées en faisant varier la direction de propagation et la polarisation d'une onde plane incidente. Ligne du haut : particules adressées. Lignes du bas : calcul de la distribution d'intensité lumineuse correspondante.

Comme nous venons de le voir, la lithographie par plasmons de surface localisés possède de multiples facettes, qui reflètent la diversité des applications relatives aux plasmons et aux nanostructures métalliques en général. Nous allons maintenant nous intéresser à un autre type de lithographie en champ proche, complémentaire des techniques présentées précédemment et qui exploite en particulier la propagation sub-longueur d'onde des plasmons de surface le long des films métalliques.

### 1.3.2 Lithographie par plasmons de surface délocalisés

Deux types d'approches ont été mises en oeuvre lors de l'utilisation de plasmons de surface délocalisés en lithographie optique. La première consiste à coupler ces plasmons avec des nanostructures métalliques disposées sur un masque de manière à reproduire dans la couche de résine photosensible les motifs sub-longueur d'onde qui y sont associés. La seconde utilise ces nanostructures pour générer des plasmons de surface contrapropagatifs. Les motifs imprimés correspondent dans ce cas au champ d'interférences résultant de la propagation et de la superposition des différents plasmons excités. Nous allons les détailler.

#### 1.3.2.1 Lithographie par transmission à travers des masques sub-longueur d'onde

Nous avons vu que le caractère champ proche des plasmons permet de repousser la limite de résolution fixée par le critère de Rayleigh. De plus, Ebbesen [16] a montré que dans le cas de films métalliques comportant des ouvertures sub-longueur d'onde, l'excitation de plasmons permet une augmentation spectaculaire de la transmission de ces structures. En effet, celle-ci ne se fait alors plus uniquement par effet tunnel direct à travers les trous sub-longueur d'onde mais fait également intervenir les plasmons excités de part et d'autre du film comme intermédiaires au couplage entre l'onde incidente et les modes évanescents des trous. Ce processus, d'autant plus efficace que la structure entourant le film métallique perforé est symétrique et que celui-ci est mince, permet de renforcer considérablement la transmission de ce type de système. Le but de cette première approche est donc de mettre à profit ces phénomènes pour transférer efficacement des motifs sub-longueur d'onde dans une couche de résine photosensible. La technique consiste ainsi à réaliser un masque métallique contenant les nanostructures à imprimer et à illuminer celui-ci de manière à y exciter des plasmons.

De nombreux types de masques ont été utilisés. Un masque d'or contenant un plot unique et éclairé dans le visible a par exemple permis de réaliser un trou isolé [17]. Ce même motif a également été effectué à des dimensions très largement sub-longueur d'onde par l'illumination dans l'UV d'un film d'aluminium possédant une nano-ouverture de forme optimisée de type bowtie [18]. La figure 1.10 montre aussi d'autres résultats obtenus à partir d'une couche d'aluminium perforée [4].

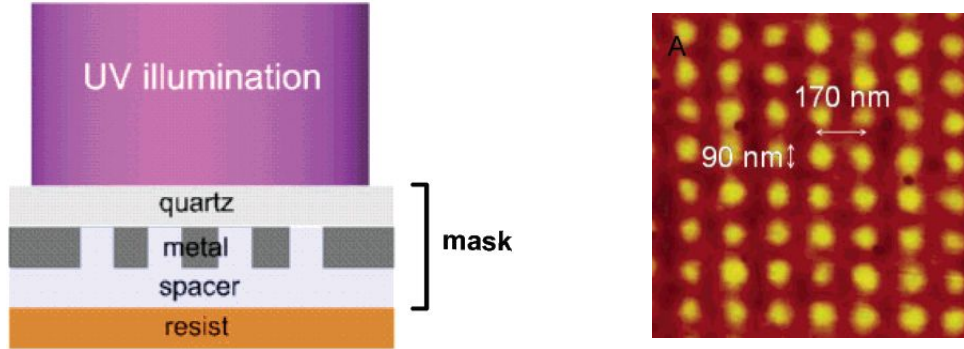


FIG. 1.10: Exemple d'un dispositif de lithographie utilisant la transmission des plasmons à travers un masque sub-longueur d'onde [4]. A gauche : Schéma en coupe du masque développé. A droite : Image AFM des motifs imprimés dans la couche de résine photosensible. Le motif initial du masque est un réseau de trous de diamètre 40 nm et de période 170 nm.

Dans ce cas, l'illumination dans l'UV d'un réseau de trous sub-longueur d'onde permet de transférer, grâce au phénomène de transmission extraordinaire de cette structure, un réseau de plots de pas identique dans la couche de résine. L'efficacité de ce type de système peut aussi être améliorée par l'ajout d'une couche métallique entre le substrat et la couche à insoler. Il a en effet été montré [19] que cette couche permet l'excitation supplémentaire de plasmons au niveau du substrat, dont le couplage avec les plasmons générés au niveau du masque conduit alors à une augmentation de l'intensité totale ainsi que du confinement du champ dans la couche de résine.

Quel que soit le dispositif mis en jeu, ce type de technique possède le gros avantage d'utiliser un masque, élément traditionnel de la lithographie optique classique. Contrairement au cas des nanoparticules ou de la lithographie par interférences que nous allons détailler ci-dessous, cette technologie simplifie donc le dessin des nanostructures associées à l'excitation des plasmons, la forme de celles-ci étant alors identique à celle des motifs à lithographier.

### 1.3.2.2 Lithographie par interférence de plasmons de surface

Nous avons montré, lors du tracé figure 1.4 de la relation de dispersion des plasmons, que ces ondes possèdent une longueur d'onde effective  $\lambda_{sp}$  plus faible que la longueur d'onde de la lumière incidente avec laquelle on les excite. Le but de cette seconde approche de lithographie par plasmons de surface délocalisés est donc d'exploiter cette propriété afin d'augmenter la résolution potentielle des motifs imprimés dans la couche de résine photosensible. Le principe consiste à réaliser un masque métallique nanostructuré dont l'illumination permet l'excitation de plasmons contrapropagatifs. La propagation et la superposition de ces plasmons génèrent alors un champ d'interférences plus ou moins complexe qui est ensuite transféré en champ proche dans la couche de résine photosensible et permet d'y imprimer des motifs variés.

Un des principaux enjeux de cette technique est la conception du masque permettant la génération du champ d'interférences souhaité. La figure 1.11 présente quelques exemples de lithographie réalisée avec ce type de dispositifs [20], [21], [22].

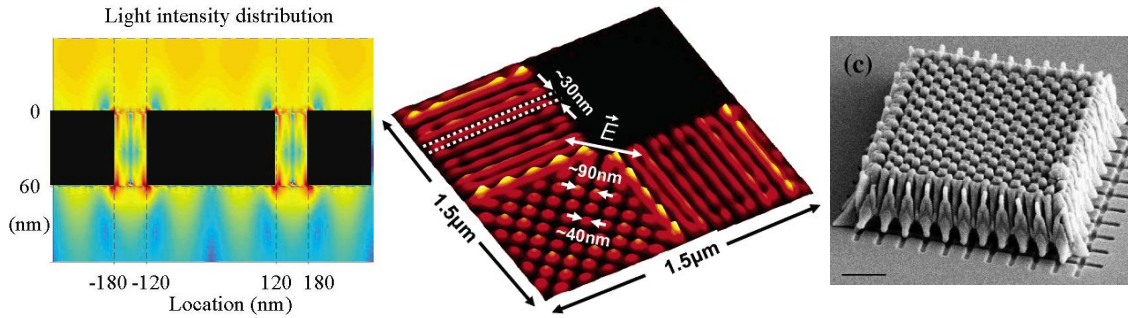


FIG. 1.11: **Exemples de lithographies réalisées par interférence de plasmons de surface.** A gauche : simulation FDTD du champ en sortie d'un réseau de fentes métalliques [20]. Au centre : distribution d'intensité théorique du champ électrique obtenue avec deux réseaux métalliques perpendiculaires [21]. A droite : image au microscope électronique à balayage (MEB) d'un motif en trois dimensions réalisé à partir d'un masque composé de deux réseaux [22]. La barre noire correspond à une distance de  $2\ \mu\text{m}$ .

L'image de gauche donne le résultat d'une simulation obtenue au voisinage d'un masque constitué d'un réseau de fentes sub-longueur d'onde. L'illumination de celui-ci induit ici l'excitation de deux ondes plasmons contrapropagatives dont l'interférence entre chaque fente conduit à l'impression de lignes dans la résine photosensible. De même, la figure centrale montre que l'utilisation de plusieurs réseaux d'excitation disjoints peut en théorie permettre de réaliser des motifs plus complexes comme des plots. Enfin, cette technique a aussi été adaptée à l'impression de motifs en trois dimensions, comme l'illustre l'image de droite. Dans ce cas, le champ d'interférences est suffisamment intense et contrasté dans les trois directions de l'espace pour insoler l'ensemble de la couche de résine photosensible. Cependant, à la différence des deux premiers exemples présentés, la taille des motifs imprimés reste de l'ordre de la longueur d'onde. En effet, les plasmons n'interviennent ici qu'au voisinage du masque métallique pour générer une figure d'interférences de base qui est ensuite propagée à des dimensions non sub-longueur d'onde dans la couche de résine.

La lithographie par interférence de plasmons possède l'avantage de conduire à l'impression de motifs qui peuvent être relativement complexes, ceux-ci ne dépendant que de la forme de la figure d'interférences générée. La résolution et l'étendue de ceux-ci sont cependant limitées puisqu'elles dépendent directement des caractéristiques des plasmons mis en jeu. Comme nous le verrons au chapitre suivant, le pas des motifs imprimés correspond en effet au pas des franges d'interférences réalisées, qui est directement relié à la longueur d'onde effective des plasmons excités. De même, les dimensions de la zone insolée sont fixées par la distance maximale sur laquelle les plasmons peuvent interférer, c'est-à-dire par leurs distances de propagation et d'atténuation.

### 1.3.3 Autres techniques

Les exemples cités précédemment rassemblent la majeure partie des techniques étudiées jusqu'à présent pour réaliser une lithographie assistée par plasmons de surface. Cependant, d'autres effets relatifs aux plasmons ont également été introduits de manière connexe afin d'améliorer les

performances de ces dispositifs. Nous allons brièvement les mentionner dans le paragraphe qui suit.

### 1.3.3.1 Focalisation sub-longueur d'onde par une super-lentille

L'élaboration de matériaux possédant des indices effectifs négatifs fait par exemple depuis quelques années l'objet d'intenses recherches. Parmi d'autres applications, ceux-ci permettent en effet de focaliser la lumière à des dimensions très largement sub-longueur d'onde : c'est l'effet dit de "super-lentille". Ce phénomène particulièrement intéressant est notamment dû au fait que ces milieux amplifient les ondes évanescentes (qui n'existent habituellement de manière significative qu'en champ proche) et qui contiennent les fortes fréquences spatiales d'un objet, rendant ainsi possible une imagerie sub-longueur d'onde en champ lointain [23], [24], [25].

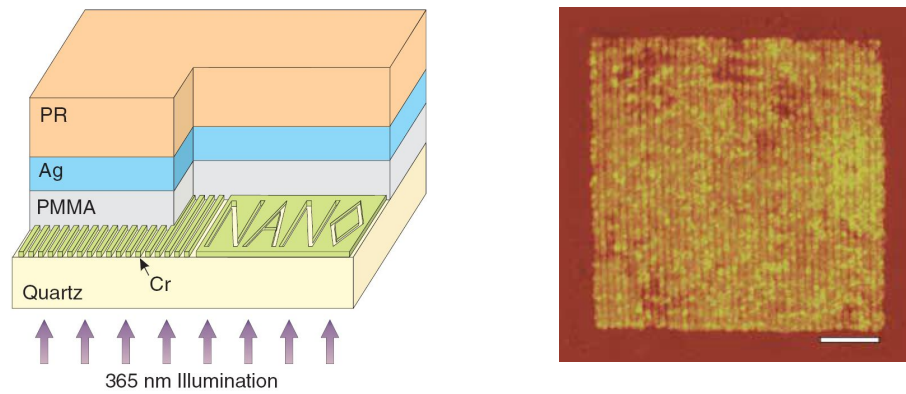


FIG. 1.12: **Résultats de lithographie obtenus par le biais d'une super-lentille constituée d'un matériau à indice négatif [26].** A gauche : schéma du système. A droite : image AFM des motifs imprimés. La barre blanche représente 1  $\mu\text{m}$ .

L'insertion de ce type de matériau dans les dispositifs de lithographie pourrait donc permettre d'une part de transférer des motifs sub-longueur d'onde dans une couche de résine photosensible et d'autre part permettrait de déporter l'image obtenue à distance du masque de lithographie. Ce dernier point est important puisqu'il supprime la contrainte d'une forte proximité entre le masque et le milieu d'imagerie due au champ proche et réduit également les risques de contamination entre le métal du masque et la résine photosensible.

La figure 1.12 illustre alors les premiers résultats obtenus avec ce type de système [26]. Le schéma du dispositif réalisé est présenté sur la figure de gauche, la super-lentille étant ici constituée d'un mince film d'argent. A la longueur d'onde d'illumination, ce métal possède en effet une permittivité diélectrique négative qui permet, comme le montre la figure de droite, de transférer efficacement des motifs largement sub-longueur d'onde dans une couche photosensible.

### 1.3.3.2 Autres effets

D'autres effets associés aux nanostructures métalliques sont également explorés afin d'être éventuellement appliqués à la lithographie. Ceux-ci incluent par exemple la génération de seconde harmonique ou la photoluminescence excitées au voisinage de nanoparticules. Ces phénomènes pourraient en effet être exploités pour insoler une couche de résine photosensible en s'affran-

chissant du fond continu dû au champ incident et permettraient ainsi d'obtenir un meilleur contraste d'exposition [27], [28]. L'excitation de résonances multipolaires le long de nanoparticules métalliques pourrait aussi être employée pour effectuer l'impression en champ proche de motifs relativement complexes [29].

L'intégration de l'ensemble de ces phénomènes en lithographie pourrait donc ouvrir de larges perspectives, notamment en terme de résolution. Ces nouvelles techniques devraient également contribuer à améliorer les performances des procédés de lithographie existants, en particulier par un meilleur contrôle de l'intensité et de la longueur d'onde des nanosources utilisées.

## 1.4 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons tout d'abord défini et donné quelques caractéristiques relatives aux plasmons de surface. Puis, nous avons dressé un état de l'art des différentes techniques actuellement employées pour effectuer une lithographie assistée par plasmons. Nous avons ainsi montré que plusieurs configurations étaient possibles, mettant en oeuvre aussi bien des plasmons de surface localisés que délocalisés. Cependant, les motifs imprimés restent de forme relativement simple et consistent la plupart du temps en des lignes ou parfois des plots. Dans cette thèse, nous nous sommes donc tout particulièrement intéressés à une technique permettant d'obtenir des motifs de formes plus complexes comme la lithographie par interférence de plasmons de surface. Le détail de celle-ci ainsi que de ses performances est présenté dans le chapitre qui suit.

## Chapitre 2

# Lithographie de motifs complexes par interférence de plasmons de surface

L'impression de motifs autres que des lignes avec une forte résolution reste un challenge en lithographie optique. En effet, la diffraction associée au passage de la lumière à travers les différents éléments du dispositif d'insolation nécessite, même pour des motifs simples, de modifier la forme du motif initial présent sur le masque pour que son image dans la résine corresponde au profil souhaité. Ce sont les corrections d'effets de proximité (Optical Proximity Correction, OPC en anglais). Or, nous avons vu au chapitre précédent que les plasmons possèdent non seulement de fortes fréquences spatiales mais aussi que la génération d'un champ d'interférences adapté peut en théorie conduire à l'impression de motifs divers [20], [21]. Dans ce chapitre, nous allons donc nous intéresser plus particulièrement aux possibilités que pourrait offrir une lithographie effectuée par le biais de l'interférence de plasmons de surface. Nous rappellerons tout d'abord le principe de ce procédé, puis nous détaillerons le modèle semi-analytique que nous avons développé afin de calculer le champ d'interférences généré et concevoir un masque adapté aux motifs que l'on souhaite imprimer. Enfin, nous présenterons les résultats expérimentaux que nous avons obtenus, résultats qui démontrent la faisabilité et le potentiel de cette technique.

### 2.1 Principe

La lithographie par interférence de plasmons de surface consiste à générer un champ d'interférences plasmonique et à utiliser celui-ci pour insoler une couche de résine photosensible. L'avantage de cette technique est qu'elle permet d'imprimer des motifs d'autant plus complexes que le champ d'interférences réalisé est complexe. En revanche, elle nécessite également de concevoir un masque nanostructuré qui, lorsqu'il est éclairé, génère effectivement le champ d'interférences souhaité.

Plusieurs solutions sont possibles afin d'exciter des plasmons contrapropagatifs et créer ce champ d'interférences. La première consiste par exemple à éclairer un prisme haut indice dans la configuration de Kretschmann-Raether avec deux ou plusieurs angles d'incidence opposés [30].

Cependant, cette technique exige un très bon contrôle de l'angle d'illumination du système et devient rapidement difficile à mettre en oeuvre dès qu'il s'agit d'imprimer d'autres motifs que des lignes. L'alternative revient alors à exciter les plasmons par le biais de nanostructures métalliques diffractantes. Une possibilité consiste ainsi à utiliser un masque perforé dans lequel les bords des ouvertures sub-longueur d'onde qu'il contient génèrent des plasmons contrapropagatifs [20]. Ce type de masque peut néanmoins se révéler relativement difficile à réaliser expérimentalement car il nécessite d'être en mesure d'effectuer précisément des trous de très faibles largeurs dans des films métalliques. Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes donc tournés vers une autre approche, dont le principe est schématisé sur la figure 2.1.

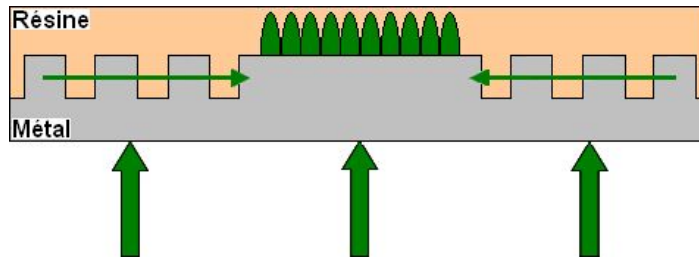


FIG. 2.1: **Schéma en coupe du dispositif étudié pour la réalisation d'une lithographie par interférence de plasmons de surface.** L'illumination de réseaux métalliques disjoints génère des plasmons contrapropagatifs dont la propagation et la superposition au niveau de la zone centrale les séparant conduit à la formation d'un champ d'interférences qui peut ensuite être imprimé en champ proche dans une couche de résine photosensible.

Celui-ci consiste ici à exciter les plasmons contrapropagatifs grâce à l'illumination en transmission d'un film métallique contenant des réseaux disjoints. La propagation et la superposition de ces plasmons le long du film conduisent alors à la création d'un champ d'interférences plus ou moins complexe dans la zone centrale séparant les réseaux, champ qui peut ensuite être imprimé en champ proche dans une couche de résine photosensible.

Dans la suite de ce chapitre, nous allons tout d'abord nous intéresser à la conception du masque relatif à cette nouvelle technique de lithographie, c'est-à-dire à la détermination de la géométrie et de la position des nanostructures métalliques excitant les plasmons. Puis, nous détaillerons le modèle semi-analytique que nous avons développé afin de calculer théoriquement l'allure du champ d'interférences généré.

Comme nous l'avons précisé en introduction, l'objectif de cette étude est de déterminer les performances et les limites intrinsèques de la technique de lithographie par interférence de plasmons de surface. Afin d'éliminer au maximum les contraintes annexes, nous avons donc choisi de nous placer dans une configuration largement favorable à l'excitation et à la propagation de plasmons. Nous avons ainsi utilisé une longueur d'onde d'illumination située dans le visible à 532 nm et pris l'argent comme métal supportant les plasmons. Pour des raisons technologiques que nous évoquerons plus loin, le masque a également été conçu et optimisé pour une fabrication sur un substrat de verre recouvert d'une épaisse couche de polyméthacrylate de méthyle (PMMA).

## 2.2 Etude théorique

Le but de cette partie est d'expliquer de manière théorique le fonctionnement de la lithographie par interférence de plasmons, c'est-à-dire de relier la géométrie des nanostructures présentes sur le masque aux motifs obtenus au final dans la couche de résine photosensible.

### 2.2.1 Conception du masque

La première étape consiste tout d'abord à déterminer les caractéristiques des plasmons supportés par le système. En effet, celles-ci nous permettront alors de fixer les dimensions et les positions relatives des nanostructures à placer sur le masque de manière à les exciter et à générer le champ d'interférences.

#### 2.2.1.1 Calcul des caractéristiques des plasmons mis en jeu

Le dispositif de lithographie étudié se compose ici d'un substrat de verre ( $n = 1.55$ ) recouvert d'une couche de PMMA ( $n = 1.49$ ) sur lequel est déposé un masque d'argent ( $n = 0.055 + 3.43i$ ) nanostructuré. L'ensemble est ensuite recouvert de la couche de résine photosensible ( $n = 1.69 + 0.015i$ ) à insoler. Or, ce dispositif sera d'autant plus efficace que l'intensité lumineuse disponible pour exposer cette couche est importante, c'est-à-dire que l'excitation des plasmons générant le champ d'interférences est efficace. Afin de maximiser le rendement du dispositif, nous avons donc choisi de dimensionner les nanostructures métalliques présentes sur le masque de manière à ce que leur illumination favorise l'excitation d'un mode propre plasmon du système.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons obtenu les caractéristiques de ces modes propres grâce à un code de calcul RCWA (acronyme de Rigorous Coupled Wave Analysis) développé au laboratoire [31]. Dans le cas d'un empilement composé de plusieurs couches planes, ce code permet de lister les indices effectifs  $n_{\text{eff}}$  et les coefficients de Fourier  $f_p$  des différents modes propres supportés par celui-ci, dont on peut ensuite extraire les modes propres plasmons. Ceux-ci se caractérisent en effet par un indice effectif dont la partie réelle est supérieure à celle du diélectrique à l'interface duquel ils sont excités (ce qui correspond au fait que leur longueur d'onde effective  $\lambda_{\text{sp}}$  est plus petite que la longueur d'onde incidente  $\lambda$  avec laquelle on les excite) et dont la partie imaginaire est non nulle (ce qui traduit le fait que ces ondes s'atténuent au fur et à mesure de leur propagation). Les longueurs caractéristiques de ces modes plasmon peuvent alors se déduire des expressions suivantes :

$$\begin{aligned}\lambda_{\text{sp}} &= \frac{\lambda}{\text{Re}(n_{\text{eff}})} \\ \delta_{\parallel} &= \frac{\lambda}{2\pi\text{Im}(n_{\text{eff}})} \\ \delta_{\perp} &= \frac{\lambda}{2\pi\text{Im}\left(\sqrt{n^2 - n_{\text{eff}}^2}\right)}\end{aligned}$$

où  $\delta_{\parallel}$  et  $\delta_{\perp}$  sont respectivement les distances de propagation et d'atténuation du mode plasmon le long et perpendiculairement à l'interface métal/diélectrique où cette onde est excitée et  $n$  est



l'indice du milieu considéré (métal ou diélectrique).

Compte-tenu de la géométrie de notre dispositif, nous avons considéré pour ce calcul l'empilement suivant : verre (substrat, d'épaisseur  $3\lambda$ ), PMMA (d'épaisseur 150 nm), argent, résine photosensible, air (milieu de sortie, d'épaisseur  $3\lambda$ ), éclairé à une longueur d'onde  $\lambda$  de 532 nm en polarisation TM. Celui-ci correspond en effet à l'empilement que l'on retrouve au centre de notre dispositif de lithographie, zone dans laquelle les plasmons doivent être excités et ainsi générer le champ d'interférences à imprimer. Afin d'optimiser le système par l'excitation de plasmons avec les meilleures propriétés possibles, nous avons également étudié uniquement le mode propre plasmon le moins atténué (c'est-à-dire possédant un indice effectif avec la partie imaginaire la plus faible) et nous avons calculé ses caractéristiques pour différentes épaisseurs de métal et de résine photosensible. Les cartographies associées sont présentées sur la figure 2.2.

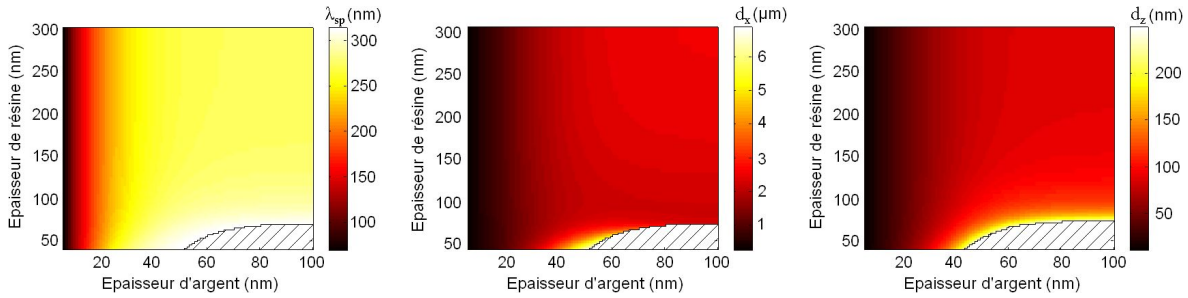


FIG. 2.2: **Cartographies des caractéristiques du mode propre plasmon le moins atténué supporté par l'empilement situé au centre du dispositif de lithographie par interférences.** A gauche : longueur d'onde du mode plasmon. Au centre : distance de propagation du mode le long du film d'argent. A droite : distance d'atténuation du plasmon dans la couche de résine. Les zones hachurées correspondent à des configurations où l'empilement considéré ne supporte pas de mode plasmon.

Ces résultats montrent globalement une baisse des longueurs caractéristiques du mode plasmon avec la diminution de l'épaisseur du film d'argent, les valeurs obtenues ne dépendant que très peu de l'épaisseur de la couche de résine. La longueur d'onde effective de ce mode reste ensuite de l'ordre de 300 nm, tandis que les distances de propagation et d'atténuation de celui-ci le long du film métallique et dans la couche de résine photosensible sont voisines respectivement de quelques microns et de la centaine de nanomètres. Ces cartographies indiquent ainsi que le choix de l'épaisseur du film d'argent est important puisque celle-ci détermine les longueurs caractéristiques des plasmons supportés par le système, longueurs qui, comme nous allons voir au paragraphe suivant, conditionnent aussi directement les dimensions et le positionnement des réseaux d'excitation sur le masque.

### 2.2.1.2 Détermination de la géométrie des structures

Le dimensionnement du masque permettant l'excitation des plasmons et la création du champ d'interférences à imprimer doit en effet répondre à plusieurs critères. En particulier, ce champ doit être suffisamment intense et contrasté pour insoler la couche de résine photosensible placée à proximité. Indépendamment de l'efficacité d'excitation de ces plasmons par le masque, cela implique tout d'abord que ces ondes ne soient pas trop atténuées lorsqu'elles interfèrent au centre du dispositif. Cela nécessite donc que cette zone d'interférences (située entre les réseaux

d'excitation disjoints) soit plus petite que la distance de propagation  $d_x = \delta_{\parallel}$  des plasmons le long du film métallique. De même, l'épaisseur de la couche de résine photosensible doit être inférieure à la distance d'atténuation  $d_z = \delta_{\perp \text{diélectrique}}$  des plasmons dans ce milieu.

Concernant ensuite les réseaux métalliques excitant les plasmons, nous avons vu que leur géométrie devait être telle que leur illumination entraîne préférentiellement l'excitation d'un mode propre plasmon du système. Comme précisé au chapitre précédent, il s'agit donc ici d'accorder le pas  $a$  de ces nanostructures de manière à ce que la projection selon  $x$  du vecteur d'onde de l'onde incidente  $k_{x\text{incident}}$  associé à celui des réseaux  $k_{x\text{réseau}}$  soit égal à celle du mode propre à exciter  $k_{x\text{sp}}$ , c'est-à-dire :

$$k_{x\text{incident}} + k_{x\text{réseau}} = k_{x\text{sp}}$$

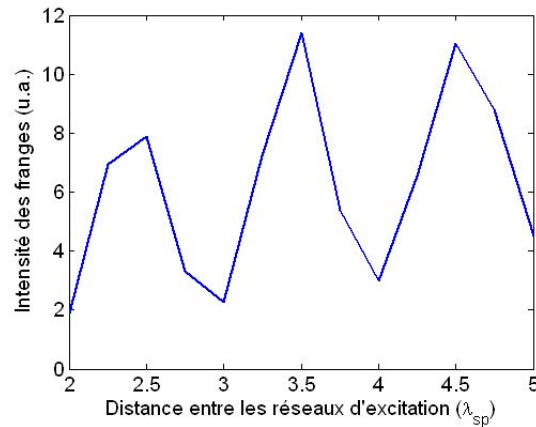
Dans le cas de l'illumination du dispositif par une onde plane en incidence normale (selon  $z$ ), cette équation se ramène alors à :

$$\begin{aligned} k_{x\text{réseau}} = k_{x\text{sp}} &\implies \frac{2\pi}{a} = \frac{2\pi}{\lambda_{\text{sp}}} \\ &\iff a = \frac{\lambda}{\text{Re}(n_{\text{eff}})} \end{aligned}$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde d'illumination et  $n_{\text{eff}}$  est l'indice effectif du mode propre plasmon à exciter calculé par RCWA.

Cette équation fixe le pas des réseaux d'excitation des plasmons. Cependant, afin de favoriser l'impression de motifs contrastés dans la couche de résine photosensible, ces nanostructures doivent également être positionnées de manière à ce que les plasmons qu'elles génèrent interfèrent constructivement. Intuitivement, cela devrait correspondre à une distance entre réseaux égale à un nombre entier de la longueur d'onde  $\lambda_{\text{sp}}$  des plasmons excités. Cependant, des calculs que nous avons effectués par la méthode des éléments finis (logiciel commercial Comsol) sur un dispositif simple comprenant deux réseaux de lignes disjoints et présentés sur la figure 2.3 montrent que les franges d'interférences sont plutôt plus intenses pour une distance bord à bord  $D$  de ces réseaux égale à un nombre impair de la moitié de la longueur d'onde plasmon.

FIG. 2.3: **Courbe de l'intensité maximale des franges d'interférences obtenues en fonction de la distance  $D$  séparant deux réseaux d'excitation disjoints.** Le champ d'interférences est plus intense lorsque les réseaux sont séparés d'un nombre impair de la moitié de la longueur d'onde des plasmons excités.



Ce résultat signifie donc que l'excitation des plasmons par les réseaux s'effectuerait non pas en bord de réseau mais plutôt au centre des plots métalliques qui les constituent.

Concernant la conception d'un masque réalisant l'impression de motifs dans une couche de résine photosensible grâce à l'interférence de plasmons contrapropagatifs excités par des réseaux métalliques disjoints, nous pouvons donc donner les règles de dessin suivantes :

- pas d'un réseau d'excitation de plasmons :  $a = \lambda_{sp}$
- distance séparant deux réseaux d'excitation :  $D = (2p + 1)\lambda_{sp}/2$  avec  $p$  un entier et  $D < d_x$
- épaisseur de la couche de résine photosensible :  $e_{résine} < d_z$

La dernière variable géométrique à déterminer dans ce dispositif de lithographie reste alors l'épaisseur de la couche métallique supportant les plasmons. Nous avons vu précédemment que ce paramètre est celui qui détermine majoritairement les caractéristiques du mode plasmon excité. Néanmoins, le choix de cette épaisseur est soumis à un compromis entre l'intensité des plasmons générés et la quantité de champ incident transmis à travers le film. En effet, plus le film métallique sera fin, moins le champ incident sera absorbé à sa traversée et donc plus les plasmons excités sur l'autre face du film seront intenses. La contrepartie est que dans ce cas, le champ incident transmis à travers le film métallique constitue un fond continu qui se superpose aux plasmons et qui, comme nous allons le détailler plus loin, vient perturber la figure d'interférences générée.

Nous avons finalement choisi une épaisseur d'argent de 50 nm. Pour une couche de résine photosensible de 70 nm, les calculs de la figure 2.2 effectués pour un substrat de verre recouvert de 150 nm de PMMA donnent alors un mode propre plasmon de longueur d'onde  $\lambda_{sp} = 295$  nm, qui se propage le long du film métallique sur une distance  $d_x = 2.44 \mu\text{m}$  et dont la distance d'atténuation dans la couche de résine  $d_z$  est d'environ 140 nm.

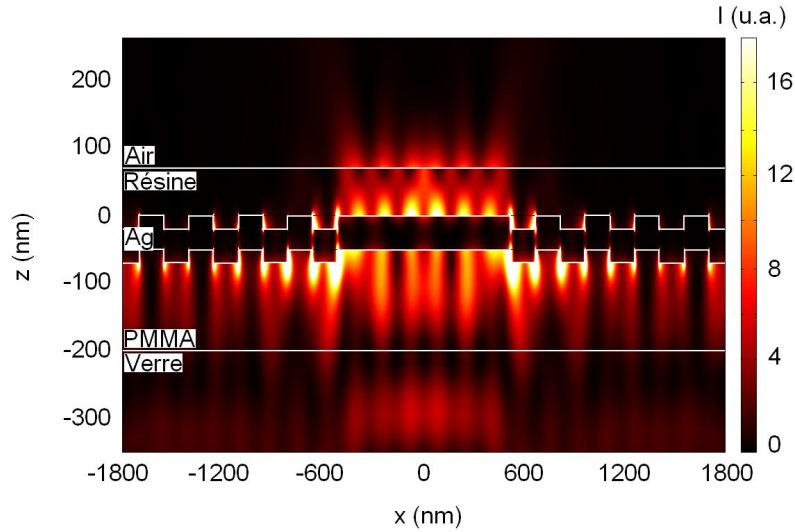


FIG. 2.4: **Simulation en deux dimensions de l'intensité du champ obtenue lors de l'illumination d'un masque réalisant l'excitation de plasmons contrapropagatifs.** Le système se compose de deux réseaux d'argent disjoints déposés sur un substrat de verre et de PMMA et recouverts d'une couche de résine photosensible. L'illumination s'effectue ici avec une onde plane incidente côté verre à une longueur d'onde de 532 nm et polarisée perpendiculairement aux lignes des réseaux.

A titre de première illustration des performances de ce type de masque, nous avons simulé en deux dimensions par la méthode des éléments finis l'intensité du champ obtenue dans cet empilement. L'excitation des plasmons se fait ici par le biais de deux réseaux disjoints de pas  $a = \lambda_{sp} = 295$  nm et de profondeur 20 nm, séparés d'une distance  $D = 3.5\lambda_{sp} \simeq 1030$  nm et éclairés

en incidence normale (côté verre) par une onde plane à 532 nm polarisée perpendiculairement aux lignes des réseaux. Les résultats sont présentés sur la figure 2.4.

Ce calcul met effectivement en évidence la présence de franges d'interférences sur l'interface argent/résine photosensible située entre les deux réseaux métalliques et dont le champ s'étend dans l'ensemble de la couche de résine. Cette simulation démontre donc la possibilité d'effectuer une lithographie avec ce type de dispositif. Le pas des franges obtenues est ensuite de l'ordre de 155 nm, ce qui correspond environ à la moitié de la longueur d'onde  $\lambda_{sp}$  des plasmons pour lesquels le masque a été adapté et confirme que le champ d'interférences généré provient de la superposition des plasmons contrapropagatifs excités par les réseaux métalliques disjoints. Cette légère différence de pas peut néanmoins s'expliquer par le fait que les calculs de modes propres détaillés précédemment ont été réalisés sur l'empilement plan central du dispositif de lithographie et non pas sur la structure complète incluant les réseaux métalliques. En effet, l'ajout de ces réseaux modifie les modes du système et notamment le mode plasmon supporté par le film métallique et impliqué dans la formation du champ d'interférences. La variation observée montre cependant que cette perturbation reste relativement faible, de l'ordre de 5 pourcents.

Dans cette partie, nous avons donné quelques règles génériques concernant la conception du masque réalisant l'excitation des plasmons contrapropagatifs. Nous allons maintenant nous intéresser plus en détail à l'allure du champ d'interférences généré par ce masque et en particulier aux différents motifs que l'on peut imprimer selon la direction de propagation et l'intensité des différentes ondes en présence.

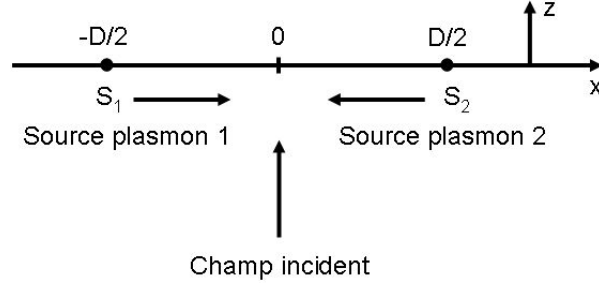
### 2.2.2 Calcul semi-analytique du champ d'interférences

Le calcul du champ d'interférences généré en sortie du masque métallique doit tenir compte de plusieurs composantes. En effet, celui-ci est constitué d'une part des différents plasmons excités, mais comporte d'autre part un terme relatif au champ incident transmis à travers le film métallique. Nous allons voir dans les calculs qui suivent que ce dernier constitue un fond continu dont l'amplitude modifie uniquement la période des franges obtenues. En revanche, la forme des motifs imprimés est directement reliée à la direction de propagation des plasmons présents sur le masque. Nous montrerons ainsi que l'excitation de plusieurs plasmons contrapropagatifs possédant des directions de propagation différentes peut conduire, par le biais d'interférences à ondes multiples, à la formation d'une figure relativement complexe. Nous allons ici donner quelques exemples de calcul de ces champs d'interférences, le modèle développé pouvant ensuite être généralisé dans des cas plus complexes.

#### 2.2.2.1 Motifs uni- et bidirectionnels

Nous allons, pour introduire ce modèle, nous placer dans le cas simple où les réseaux disposés sur le masque réalisent l'excitation de plasmons contrapropagatifs selon une seule direction de l'espace. C'est le cas par exemple pour un masque contenant deux réseaux de lignes disjoints de même orientation et éclairés avec une polarisation perpendiculaire aux lignes de ces réseaux. Cette situation peut être ramenée au problème schématisé sur la figure 2.5.

FIG. 2.5: Bilan des différentes ondes intervenant dans l'interférence de plasmons contrapropagatifs selon une seule direction de l'espace. Le problème peut être modélisé par deux sources séparées d'une distance  $D$  émettant deux ondes plasmons contrapropagatives auxquelles on ajoute le champ incident transmis de direction de propagation perpendiculaire.



Les réseaux du masque peuvent en effet être considérés comme deux sources  $S_1$  et  $S_2$  séparées d'une distance  $D$  et émettant des plasmons contrapropagatifs colinéaires se propageant selon  $x$ , c'est-à-dire le long de la surface du film métallique. En supposant une illumination en incidence normale, le champ incident transmis à travers le film ajoute alors une contribution supplémentaire au champ d'interférences, sous la forme d'une onde se propageant selon  $z$ , c'est-à-dire perpendiculairement au plan du film métallique.

Considérons tout d'abord le champ électromagnétique associé aux plasmons. Comme montré au chapitre précédent, celui-ci est polarisé TM et peut donc être entièrement décrit par l'unique composante du champ magnétique  $H_y^{\text{plasmons}}$ . Avec les notations précédentes, en prenant des ondes planes et en décomposant ce champ en série de Fourier, celui-ci peut alors s'écrire :

- plasmon 1 (propagation vers les  $x > 0$ ) :

$$H_y^{\text{plasmon1}}(x, z) = A \left[ \sum_{p=-M}^M f_p \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} \left( x + \frac{D}{2} \right) \right)$$

- plasmon 2 (propagation vers les  $x < 0$ ) :

$$H_y^{\text{plasmon2}}(x, z) = A \left[ \sum_{p=-M}^M f_p \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} \left( -x + \frac{D}{2} \right) \right)$$

où  $f_p$  et  $n_{\text{eff}}$  sont respectivement les coefficients de Fourier et l'indice effectif du mode plasmon excité (obtenus par le biais du calcul de modes propres RCWA présenté au paragraphe précédent),  $M$  est le nombre d'harmoniques considéré,  $\Lambda$  la période de réplication associée,  $A$  est une constante et  $\lambda$  est la longueur d'onde d'illumination. Dans la suite, on prendra  $M = 100$  et  $\Lambda \sim 10\lambda$ .

Or, les résines utilisées en lithographie sont sensibles à l'intensité du champ électrique. C'est donc le calcul de celui-ci qui décrira l'allure des motifs imprimés. Les équations de Maxwell donnent :

$$E_x = -\frac{j}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \left( \frac{\partial H_y}{\partial z} \right) \quad \text{et} \quad E_z = \frac{j}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \left( \frac{\partial H_y}{\partial x} \right)$$

avec  $\omega = 2\pi c/\lambda$  et  $\varepsilon_0$ ,  $\varepsilon_r$  étant respectivement la permittivité diélectrique du vide et la permittivité diélectrique relative du milieu considéré. On obtient finalement les expressions des champs électriques associés aux plasmons contrapropagatifs :

- plasmon 1 (propagation vers les  $x > 0$ ) :

$$E_x^{\text{plasmon1}}(x, z) = A \left[ \sum_{p=-M}^M \frac{f_p}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \frac{2\pi}{\Lambda} p \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} \left( x + \frac{D}{2} \right) \right) \quad (2.1)$$

$$E_z^{\text{plasmon1}}(x, z) = A \left[ \sum_{p=-M}^M -\frac{f_p}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} \left( x + \frac{D}{2} \right) \right) \quad (2.2)$$

- plasmon 2 (propagation vers les  $x < 0$ ) :

$$E_x^{\text{plasmon2}}(x, z) = A \left[ \sum_{p=-M}^M \frac{f_p}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \frac{2\pi}{\Lambda} p \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} \left( -x + \frac{D}{2} \right) \right) \quad (2.3)$$

$$E_z^{\text{plasmon2}}(x, z) = A \left[ \sum_{p=-M}^M \frac{f_p}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} \left( -x + \frac{D}{2} \right) \right) \quad (2.4)$$

Considérons maintenant la contribution du champ incident au champ d'interférences. Celui-ci est polarisé perpendiculairement aux lignes des réseaux. Il est donc polarisé TM et, de même que pour les plasmons, peut être défini par l'unique composante du champ magnétique  $H_y^{\text{incident}}$ . Pour une incidence normale (selon  $z$ ), le champ magnétique incident transmis s'écrit ainsi :

$$H_y^{\text{incident}}(z) = A_0 \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n z \right)$$

avec  $A_0$  une constante et  $n$  l'indice du milieu considéré. On trouve donc l'expression du champ électrique relatif au champ incident transmis à travers le film métallique :

$$E_x^{\text{incident}}(z) = A_0 \frac{2\pi}{\lambda} \frac{n}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n z \right) \quad \text{et} \quad E_z^{\text{incident}} = 0 \quad (2.5)$$

Les expressions (2.1) à (2.5) permettent alors de calculer le champ d'interférence total présent dans la couche de résine photosensible. Celui-ci en effet donné par :

$$\begin{aligned} \vec{E}_{\text{tot}} &= E_{\text{tot}x} \vec{e}_x + E_{\text{tot}z} \vec{e}_z \\ &= \left( E_x^{\text{plasmon1}} + E_x^{\text{plasmon2}} + E_x^{\text{incident}} \right) \vec{e}_x + \left( E_z^{\text{plasmon1}} + E_z^{\text{plasmon2}} \right) \vec{e}_z \end{aligned}$$

L'intensité de ce champ d'interférences est finalement obtenue en appliquant la relation :

$$I = E_{\text{tot}x} E_{\text{tot}x}^* + E_{\text{tot}z} E_{\text{tot}z}^*$$

Cette expression permet de prévoir les profils d'intensité obtenus dans la couche de résine photosensible selon le mode plasmon excité par les réseaux disjoints (paramètre  $n_{\text{eff}}$ ), la largeur de la zone d'interférences (distance  $D$ ) et l'amplitude des différentes ondes en présence (constantes  $A$  pour les plasmons et  $A_0$  pour le champ incident transmis). Quelques exemples de ces calculs sont présentés sur la figure 2.6.

Il s'agit ici de profils de champ calculés après une propagation de ceux-ci dans 70 nm de résine photosensible ( $n = 1.69 + 0.015i$ ), pour des plasmons contrapropagatifs d'indice effectif  $n_{\text{eff}} = 1.795 + 0.035i$  excités par des réseaux métalliques distants de  $D = 3.5 \lambda_{\text{sp}} \simeq 1030$  nm, configuration qui correspond à l'exemple traité précédemment et illustré figure 2.4. La figure

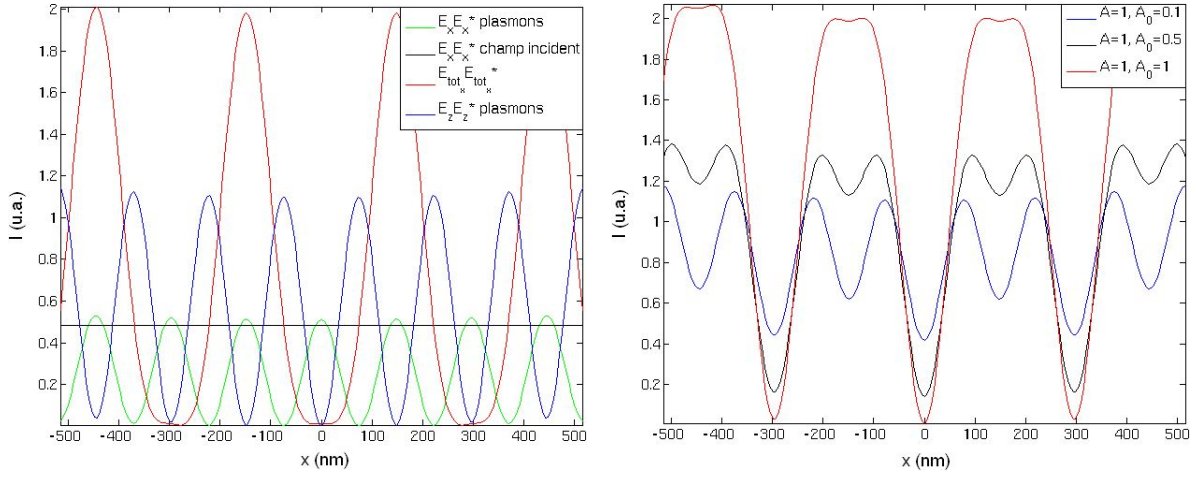


FIG. 2.6: **Profils de champ dans la zone d'interférences dans le cas de l'excitation de plasmons contrapropagatifs dirigés selon une seule direction de l'espace.** A gauche : Répartition de l'intensité du champ selon les différentes composantes du champ électrique et les ondes en présence ( $A = 1$ ,  $A_0 = 1$ ). A droite : Profil d'intensité à la surface de la couche de résine photosensible pour différentes amplitudes du champ incident transmis.

de gauche montre la répartition de l'intensité selon les composantes du champ électrique et les différentes ondes qui interfèrent. Plusieurs remarques peuvent alors être effectuées.

Concernant le champ attribué aux plasmons (courbes verte et bleue), les amplitudes relatives des deux courbes concernées indiquent tout d'abord une nette domination de la composante en  $z$  pour ce champ. Les intensités correspondantes sont également déphasées de  $\pi/2$  et possèdent une période  $P = \lambda_{sp}/2$ , deux fois plus petite que celle du profil d'intensité de la composante en  $x$  du champ total  $E_{tot_x}$  (courbe rouge). Ce phénomène, dû à la présence de la composante du champ incident transmis, joue un rôle déterminant sur le profil d'intensité final. En effet, la figure de droite met en évidence que l'amplitude de ce champ modifie considérablement l'allure des franges obtenues. Tant que l'amplitude du champ incident transmis est faible (typiquement inférieure d'un facteur 10) par rapport à celle des plasmons,  $E_{tot_x}$  reste très inférieur à  $E_{tot_z}$  et le profil du champ d'interférences total est globalement celui de la composante en  $z$  des plasmons, à savoir des franges de période  $\lambda_{sp}/2$  (courbe bleue). Cependant, lorsque l'amplitude du champ incident transmis augmente, la composante  $E_{tot_x}$  du champ total augmente et ne devient plus négligeable devant  $E_{tot_z}$ . On observe alors une modification progressive du profil des franges (courbe noire), dont la période passe de  $\lambda_{sp}/2$  à  $\lambda_{sp}$ , cas extrême où la contribution de  $E_{tot_z}$  dans le champ total devient faible et où celui-ci devient globalement de forme identique à  $E_{tot_x}$  (courbe rouge).

Ces profils montrent ainsi que la superposition de trois ondes (deux plasmons contrapropagatifs et le champ incident transmis) génère un champ d'interférences composé de franges rectilignes, dont le pas et le contraste dépendent de l'amplitude du champ incident. Deux réseaux de lignes disjoints de même orientation permettront donc d'imprimer des lignes parallèles.

Il faut noter que les calculs détaillés ici ont été effectués dans le cas particulier où les plasmons contrapropagatifs sont excités selon la direction  $x$ . Cependant, le même raisonnement peut s'appliquer au cas où les lignes composant les réseaux disjoints sont orientés selon une autre direction.

Pour une orientation de celles-ci selon  $y$ , celui-ci conduit par exemple aux champs suivants pour les plasmons contrapropagatifs :

- plasmon 1 (propagation vers les  $y > 0$ ) :

$$E_y^{\text{plasmon1}}(y, z) = A \left[ \sum_{p=-M}^M -\frac{f_p}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \frac{2\pi}{\Lambda} p \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} \left( y + \frac{D}{2} \right) \right) \quad (2.6)$$

$$E_z^{\text{plasmon1}}(y, z) = A \left[ \sum_{p=-M}^M \frac{f_p}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} \left( y + \frac{D}{2} \right) \right) \quad (2.7)$$

- plasmon 2 (propagation vers les  $y < 0$ ) :

$$E_y^{\text{plasmon2}}(y, z) = A \left[ \sum_{p=-M}^M -\frac{f_p}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \frac{2\pi}{\Lambda} p \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} \left( -y + \frac{D}{2} \right) \right) \quad (2.8)$$

$$E_z^{\text{plasmon2}}(y, z) = A \left[ \sum_{p=-M}^M -\frac{f_p}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} \left( -y + \frac{D}{2} \right) \right) \quad (2.9)$$

Le champ incident transmis associé s'écrit également :

$$E_y^{\text{incident}}(z) = -A_0 \frac{2\pi}{\lambda} \frac{n}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n z \right) \quad \text{et} \quad E_z^{\text{incident}} = 0 \quad (2.10)$$

Enfin, l'association de plusieurs réseaux d'orientations et de positions relatives différentes peut aussi permettre de réaliser des motifs plus complexes que des lignes. En effet, le champ d'interférences obtenu résulte alors de la superposition des différentes ondes plasmons contrapropagatives excitées et peut ainsi faire intervenir de nombreuses directions, amplitudes et phases différentes. La figure 2.7 montre ainsi un exemple de champ qui peut être obtenu.

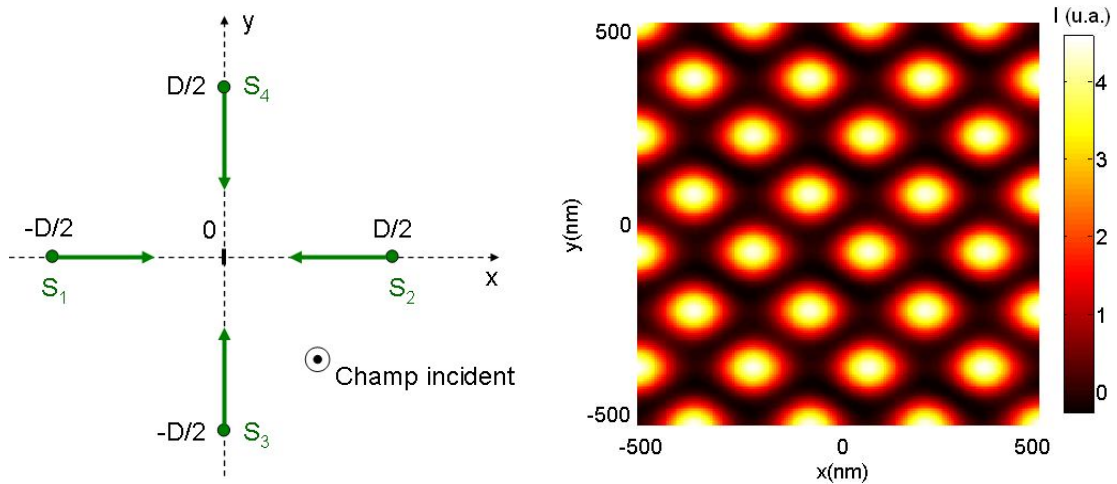


FIG. 2.7: **Allure du champ d'interférences généré par l'illumination de quatre réseaux deux à deux perpendiculaires.** A gauche : schéma récapitulatif des différentes ondes en présence. A droite : intensité du champ d'interférences correspondant. L'interférence de quatre ondes plasmons perpendiculaires ( $A = 1$ ) et d'un champ incident transmis ( $A_0 = 0.1$ ) peut dans ce cas conduire à la formation de plots.

Le schéma de gauche récapitule les différentes ondes en présence. Le champ d'interférences observé à droite résulte en effet de la superposition de quatre ondes plasmons se propageant



perpendiculairement (selon  $x$  et  $y$ ) et du champ incident transmis à travers le film métallique qui leur est associé. Le calcul a été ici effectué directement à partir des expressions des différents champs donnés par les relations (2.1) à (2.10) en prenant  $A = 1$  et  $A_0 = 0.1$ , les autres paramètres étant les mêmes que dans les exemples précédents. La figure d'interférence obtenue consiste dans ce cas en une succession de points chauds qui pourraient alors conduire à l'impression de plots. Nous verrons dans la suite que ces motifs peuvent par exemple être réalisés par l'illumination de quatre réseaux disjoints orientés perpendiculairement et éclairés avec une polarisation à  $45^\circ$  de l'axe des lignes.

Dans ce paragraphe, nous avons montré, au travers de la présentation d'un modèle semi-analytique de calcul de champ, que l'interférence de plasmons de surface contrapropagatifs générés par des masques contenant des réseaux disjoints de lignes métalliques pouvait potentiellement permettre d'imprimer des lignes ou des plots dans une couche de résine photosensible. Ce modèle de calcul peut néanmoins être généralisé et prédire la forme de champs générés par d'autres types de structures. Dans la suite, nous allons par exemple détailler les adaptations que nous avons effectuées afin de calculer les champs d'interférences obtenus dans le cas où ces plasmons sont excités au centre d'une seule géométrie de surface fermée constituée de réseaux métalliques concentriques circulaires.

### 2.2.2.2 Motifs circulaires

L'avantage de l'utilisation de réseaux métalliques concentriques pour exciter des plasmons contrapropagatifs et générer un champ d'interférences à imprimer dans une couche de résine photosensible est que cette surface fermée permet d'exciter et de propager ces ondes dans toutes les directions de l'espace. Cette configuration favorise donc la création de champs d'interférences complexes et permet potentiellement la lithographie de motifs très variés. Nous allons ici décrire à titre d'exemple le calcul de ces champs dans le cas où ces réseaux sont concentriques circulaires et sont éclairés avec une polarisation linéaire. Le principe du calcul consiste ici à évaluer les composantes du champ associées aux différentes ondes en présence pour une direction particulière du plan du masque, puis à intégrer ces contributions selon toutes les directions de celui-ci. Cette démarche peut ensuite être généralisée au cas de réseaux de formes plus complexes et d'autres polarisations incidentes en modifiant l'amplitude et la phase de chacune d'entre elles.

Le schéma de la figure 2.8 donne quelques notations relatives à ce calcul.

La première étape consiste donc à exprimer le champ  $\vec{H}_T$  relatif à une onde plasmon excitée selon une direction particulière du plan du masque ( $xOy$ ), faisant par exemple un angle  $\theta$  avec l'horizontale. Le champ plasmon total sera alors obtenu en intégrant cette quantité entre 0 et  $2\pi$ .

Or, nous avons vu dans le premier chapitre que dans le cas de l'excitation de plasmons par le biais de nanostructures diffractantes comme des réseaux, l'amplitude du champ généré dépend de celle du champ électrique incident selon la direction de propagation de ces plasmons. Avec les notations de la figure 2.8, nous pouvons donc écrire :

- si  $\vec{E} = E^X \vec{e}_x$  (polarisation linéaire selon  $x$ ) :  $H_T \propto E^X \cos(\theta)$
- si  $\vec{E} = E^Y \vec{e}_y$  (polarisation linéaire selon  $y$ ) :  $H_T \propto E^Y \sin(\theta)$

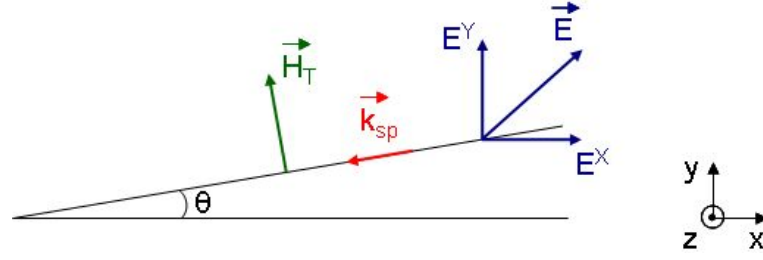


FIG. 2.8: Schéma dans le plan du masque (xOy) des champs et des notations impliqués dans le calcul du champ d'interférences généré par des réseaux circulaires éclairés avec une polarisation linéaire. La configuration présentée correspond à l'excitation d'une onde plasmon selon la direction  $\vec{k}_{sp}$  faisant un angle  $\theta$  avec l'horizontale. Le champ électrique incident  $\vec{E}$  est décomposé selon deux composantes perpendiculaires  $E^X$  et  $E^Y$ , le champ magnétique des plasmons est donné par le champ transverse  $\vec{H}_T$ .

Les plasmons excités par les réseaux circulaires auront par conséquent une amplitude d'autant plus forte que la projection du champ électrique incident selon leur direction de propagation est grande. De même que dans le calcul des champs d'interférences en deux dimensions précédent, le champ magnétique des plasmons  $\vec{H}_T$  peut ensuite être obtenu par une décomposition en série de Fourier. On a :

$$\vec{H}_T(x, y, z, \theta) = \left[ \sum_{p=-M}^M f_p \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \vec{H}(x, y, \theta) = F(z) \vec{H}(x, y, \theta)$$

où, de même que précédemment, les différents  $f_p$  sont les coefficients de Fourier du mode plasmon excité (obtenus par le biais du calcul de modes propres RCWA),  $M$  est le nombre d'harmoniques considéré,  $\Lambda$  la période de réplication associée et  $\vec{H}(x, y, \theta)$  est le terme de phase correspondant à la propagation de l'onde plasmon.

Or, la particularité d'un réseau circulaire est que le point de génération des plasmons selon chaque direction du plan contenant le réseau est situé à la même distance du centre de celui-ci. Cette structure peut ainsi être considérée comme une multitude de sources plasmon disposées à une distance  $D/2$  du centre du réseau et d'amplitude variable. Pour des ondes planes, le terme de phase  $\vec{H}(x, y, \theta)$  relatif aux plasmons peut donc s'écrire sous la forme :

$$\begin{aligned} \vec{H}(x, y, \theta) &= A \exp \left[ -j k_{sp} \cos^2(\theta) \left( x - \frac{D}{2} \right) \right] \exp \left[ -j k_{sp} \sin^2(\theta) \left( y - \frac{D}{2} \right) \right] \vec{e}_{H_T} \\ &= A \Phi(x, y, \theta) \vec{e}_{H_T} \end{aligned}$$

où  $k_{sp} = 2\pi n_{eff}/\lambda$  est la norme du vecteur d'onde des plasmons dans le plan du masque (xOy),  $\lambda$  est la longueur d'onde d'illumination,  $n_{eff}$  est l'indice effectif des plasmons considérés,  $\vec{e}_{H_T}$  est le vecteur unitaire tel que  $\vec{H}_T = H_T \vec{e}_{H_T}$  et  $A$  est une constante.

De plus, le champ magnétique des plasmons  $\vec{H}_T$  peut aussi se décomposer selon deux composantes perpendiculaires  $H_x^{plasmon}$  et  $H_y^{plasmon}$ , telles que :

$$H_x^{plasmon} = -\sin(\theta) H_T \quad \text{et} \quad H_y^{plasmon} = \cos(\theta) H_T$$

En projetant et en intégrant entre 0 et  $2\pi$ , on obtient alors le champ magnétique total associé aux plasmons générés par le réseau circulaire :

- si  $\vec{E} = E^X \vec{e}_x$  :

$$H_x^{\text{plasmon}}(x, y, z) = -AF(z) \int_0^{2\pi} \cos(\theta) \sin(\theta) \Phi(x, y, \theta) d\theta$$

$$H_y^{\text{plasmon}}(x, y, z) = AF(z) \int_0^{2\pi} \cos^2(\theta) \Phi(x, y, \theta) d\theta$$

- si  $\vec{E} = E^Y \vec{e}_y$  :

$$H_x^{\text{plasmon}}(x, y, z) = -AF(z) \int_0^{2\pi} \sin^2(\theta) \Phi(x, y, \theta) d\theta$$

$$H_y^{\text{plasmon}}(x, y, z) = AF(z) \int_0^{2\pi} \cos(\theta) \sin(\theta) \Phi(x, y, \theta) d\theta$$

Le champ électrique correspondant s'obtient ensuite en écrivant les équations de Maxwell :

$$E_x = -\frac{j}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \left( \frac{\partial H_y}{\partial z} \right) \quad E_y = \frac{j}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \left( \frac{\partial H_x}{\partial z} \right) \quad E_z = \frac{j}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \left( \frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} \right)$$

et finalement, on trouve l'expression des champs électriques des plasmons excités par le réseau circulaire :

- si  $\vec{E} = E^X \vec{e}_x$  :

$$E_x^{\text{plasmon}}(x, y, z) = \frac{A}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \frac{2\pi}{\Lambda} \left[ \sum_{p=-M}^M p f_p \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \int_0^{2\pi} \cos^2(\theta) \Phi(x, y, \theta) d\theta \quad (2.11)$$

$$E_y^{\text{plasmon}}(x, y, z) = \frac{A}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \frac{2\pi}{\Lambda} \left[ \sum_{p=-M}^M p f_p \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \int_0^{2\pi} \cos(\theta) \sin(\theta) \Phi(x, y, \theta) d\theta \quad (2.12)$$

$$E_z^{\text{plasmon}}(x, y, z) = \frac{A}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} k_{sp} F(z) \int_0^{2\pi} [\cos^3(\theta) + \cos(\theta) \sin^2(\theta)] \Phi(x, y, \theta) d\theta \quad (2.13)$$

- si  $\vec{E} = E^Y \vec{e}_y$  :

$$E_x^{\text{plasmon}}(x, y, z) = \frac{A}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \frac{2\pi}{\Lambda} \left[ \sum_{p=-M}^M p f_p \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \int_0^{2\pi} \cos(\theta) \sin(\theta) \Phi(x, y, \theta) d\theta \quad (2.14)$$

$$E_y^{\text{plasmon}}(x, y, z) = \frac{A}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \frac{2\pi}{\Lambda} \left[ \sum_{p=-M}^M p f_p \exp \left( j \frac{2\pi}{\Lambda} p z \right) \right] \int_0^{2\pi} \sin^2(\theta) \Phi(x, y, \theta) d\theta \quad (2.15)$$

$$E_z^{\text{plasmon}}(x, y, z) = \frac{A}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} k_{sp} F(z) \int_0^{2\pi} [\cos^2(\theta) \sin(\theta) + \sin^3(\theta)] \Phi(x, y, \theta) d\theta \quad (2.16)$$

Ces expressions donnent la contribution des plasmons au champ d'interférences présent au centre des réseaux concentriques circulaires. Cependant, de même que pour les calculs en deux dimensions effectués précédemment, celui-ci se compose également d'une part de champ incident transmis à travers le film métallique les supportant. Pour une onde plane en incidence normale, l'intégration des contributions de ce champ selon toutes les directions du plan donne dans ce cas :

- si  $\vec{E} = E^X \vec{e}_x$  :

$$H_x^{\text{incident}}(x, y, z) = -A_0 \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} z \right) \int_0^{2\pi} \cos(\theta) \sin(\theta) d\theta = 0$$

$$H_y^{\text{incident}}(x, y, z) = A_0 \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} z \right) \int_0^{2\pi} \cos^2(\theta) d\theta = A_0 \exp \left( j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} z \right) \pi$$

où  $A_0$  est une constante, ce qui conduit à :

$$E_x^{\text{incident}}(x, y, z) = A_0 \frac{2\pi}{\lambda} \frac{n}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \pi \exp\left(j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} z\right) \quad (2.17)$$

$$E_y^{\text{incident}}(x, y, z) = E_z^{\text{incident}}(x, y, z) = 0 \quad (2.18)$$

- si  $\vec{E} = E^Y \vec{e}_y$  :

$$H_x^{\text{incident}}(x, y, z) = -A_0 \exp\left(j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} z\right) \int_0^{2\pi} \sin^2(\theta) d\theta = -A_0 \exp\left(j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} z\right) \pi$$

$$H_y^{\text{incident}}(x, y, z) = A_0 \exp\left(j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} z\right) \int_0^{2\pi} \cos(\theta) \sin(\theta) d\theta = 0$$

et donc :

$$E_y^{\text{incident}}(x, y, z) = A_0 \frac{2\pi}{\lambda} \frac{n}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} \pi \exp\left(j \frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{eff}} z\right) \quad (2.19)$$

$$E_x^{\text{incident}}(x, y, z) = E_z^{\text{incident}}(x, y, z) = 0 \quad (2.20)$$

Finalement, le champ d'interférences total présent au centre des réseaux concentriques circulaires s'obtient en sommant les différentes contributions dues aux plasmons et au champ incident transmis :

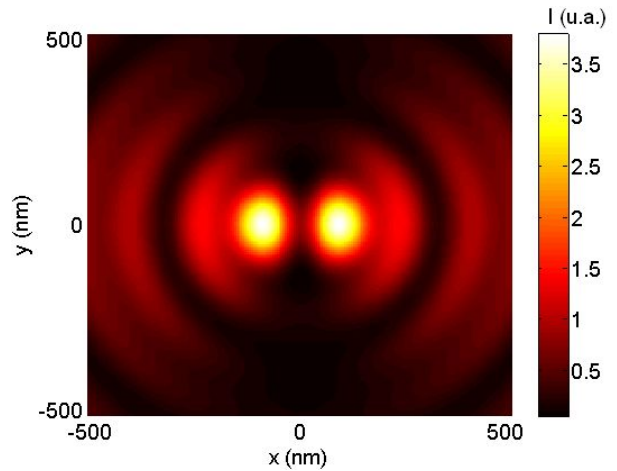
$$\begin{aligned} \vec{E}_{\text{tot}} &= E_{\text{tot}_x} \vec{e}_x + E_{\text{tot}_y} \vec{e}_y + E_{\text{tot}_z} \vec{e}_z \\ &= \left(E_x^{\text{plasmon}} + E_x^{\text{incident}}\right) \vec{e}_x + \left(E_y^{\text{plasmon}} + E_y^{\text{incident}}\right) \vec{e}_y + \left(E_z^{\text{plasmon}} + E_z^{\text{incident}}\right) \vec{e}_z \end{aligned}$$

d'où on tire l'intensité totale correspondante :

$$I = E_{\text{tot}_x} E_{\text{tot}_x}^* + E_{\text{tot}_y} E_{\text{tot}_y}^* + E_{\text{tot}_z} E_{\text{tot}_z}^*$$

Pour un champ électrique incident polarisé selon  $x$ , la figure 2.9 présente alors un exemple de ce champ d'interférences. Les valeurs des différents paramètres intervenant dans le calcul restent les mêmes que dans les exemples précédents, en particulier  $A = 1$ ,  $A_0 = 0.1$  et  $D = 3.5 \lambda_{\text{sp}} \simeq 1030$  nm.

FIG. 2.9: **Allure du champ d'interférences généré par l'illumination d'un réseau circulaire avec une polarisation linéaire selon  $x$ .** Le réseau génère des ondes plasmon dans toutes les directions du plan ( $xOy$ ) dont l'amplitude est d'autant plus grande que la projection du champ incident selon ces directions est grande. Le calcul montre que la superposition de ces ondes avec le champ incident transmis conduit à un champ d'interférences relativement complexe.



Ces calculs montrent ainsi que la superposition de plasmons excités par des réseaux concentriques circulaires avec le champ incident transmis à travers le film métallique les supportant

conduit à la formation d'un champ d'interférences relativement complexe. L'illumination de ce réseau circulaire par un champ électrique incident polarisé linéairement selon  $x$  génère en effet des ondes plasmon selon toutes les directions du plan du réseau, avec une amplitude d'autant plus forte que la projection de ce champ selon les différentes directions est grande. La figure d'interférences finale est donc préférentiellement orientée selon la direction de polarisation incidente et comprend ici deux points chauds qui pourraient par exemple être utilisés pour imprimer deux plots localisés dans une couche de résine photosensible. Dans la suite, nous verrons également que ce type de dispositif peut générer d'autres formes de champs, en particulier en modifiant la polarisation incidente sur celui-ci.

Dans cette partie, nous avons donné quelques exemples et méthodes de calcul de champs d'interférences générés par différents types de réseaux. L'étude théorique que nous avons effectuée s'est essentiellement basée sur la représentation de ces réseaux comme des sources locales de plasmons et a ainsi permis de relier l'allure du champ d'interférences réalisé à la position de ces nanostructures sur le masque. Nous avons par exemple montré que des réseaux de lignes métalliques disjoints pouvaient générer des lignes ou des plots et que des réseaux concentriques circulaires pouvaient conduire à des figures d'interférences plus complexes. La forme des motifs imprimés dans la couche de résine photosensible dépend ensuite de la réponse optique de cette couche. Dans la plupart des cas, les polymères utilisés sont sensibles à l'intensité du champ électrique généré et l'allure des motifs obtenus est alors directement donnée par cette quantité. Il existe cependant d'autres types de résines, comme celle que nous allons détailler au paragraphe suivant, qui ont un comportement variable selon la polarisation du champ avec lesquelles on les insole et pour lesquelles la prédiction de la forme des motifs imprimés nécessite une adaptation du modèle précédent.

### **2.2.3 Adaptation du modèle à l'utilisation d'une résine du type PMMA dopé DR1**

Nous allons ici décrire le comportement d'une résine photosensible particulière, le PMMA dopé DR1, résine que nous avons utilisée expérimentalement dans la suite pour valider les performances de la lithographie par interférence de plasmons de surface. Nous donnerons tout d'abord quelques unes de ses caractéristiques, puis nous montrerons comment modifier le modèle de calcul du champ d'interférences précédent afin de prédire la forme des motifs imprimés dans cette couche.

#### **2.2.3.1 Composition du PMMA dopé DR1**

Le PMMA dopé DR1 est une résine photosensible constituée de molécules d'azobenzène de formule chimique [4-(N-(2-hydroxyéthyl)-N-éthyl-)amino-4'-nitroazobenzène] greffées à une matrice de PMMA. Ce polymère possède plusieurs propriétés. La figure 2.10 présente tout d'abord la variation de l'indice de ce matériau en fonction de la longueur d'onde.

Ce graphe montre un spectre d'absorption maximal autour de 450 nm, avec une absorption non nulle de 400 à 600 nm, ce qui le rend photosensible et donc utilisable en lithographie sur toute cette gamme de longueurs d'onde. Ce polymère est ainsi particulièrement bien adapté pour

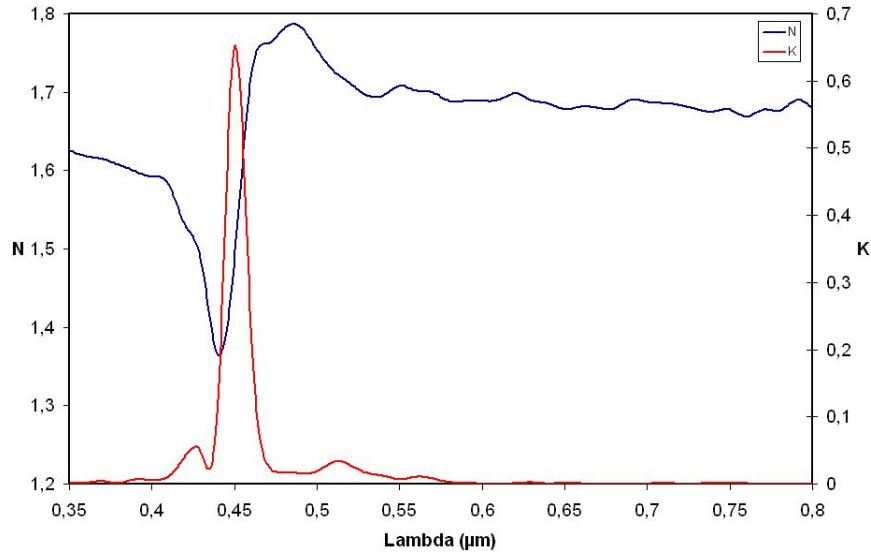


FIG. 2.10: **Propriétés optiques du PMMA dopé DR1.** Le polymère possède un pic d'absorption centré autour de 450 nm, avec une absorption non nulle dans toute la gamme des longueurs d'onde visibles et un indice de l'ordre de 1.7.

nos tests de lithographie par interférence de plasmons, où la longueur d'onde d'illumination est de 532 nm. L'indice de ce matériau reste également de l'ordre de 1.7, en particulier pour des longueurs d'onde supérieures à 500 nm.

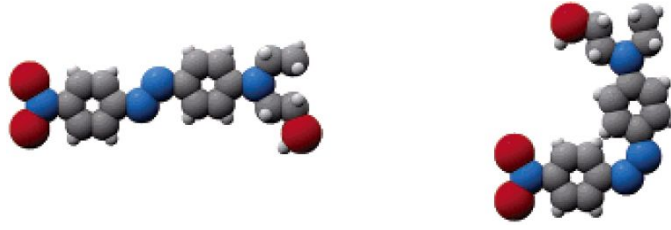
Le PMMA dopé DR1 présente ensuite plusieurs avantages. La présence du PMMA comme base de celui-ci le rend par exemple relativement souple d'utilisation puisque ce polymère est employé couramment en lithographie électronique. Cependant, le plus gros atout de ce matériau sont ses propriétés d'auto-développement. Sous l'action de la lumière, celui-ci développe en effet spontanément une topographie de surface et ne nécessite par conséquent aucun développement après exposition pour révéler les motifs qui ont été imprimés. Cette caractéristique est très intéressante puisqu'elle permet d'observer directement le résultat de l'insolation, par microscopie à force atomique par exemple. Nous allons revenir plus en détail sur l'origine de cette propriété au paragraphe suivant.

### 2.2.3.2 Comportement en polarisation

La topographie obtenue après insolation du PMMA dopé DR1 est le résultat d'une migration des molécules d'azobenzène qui le constituent. Sous l'action du flux lumineux, la recherche d'un état énergétique minimum conduit en effet ces molécules à passer successivement de leur forme "cis" à leur forme "trans". Ces transformations ont pour conséquence le déplacement de ces molécules au sein de la matrice de PMMA et contraignent alors le matériau à une réorganisation à l'échelle moléculaire et donc à une modification de topographie [32], [33]. Les deux isomères "cis" et "trans" de ces molécules d'azobenzène sont présentés sur la figure 2.11.

Plusieurs études ont ensuite montré que cette migration dépendait de la polarisation du champ incident. Les composantes transverses de celui-ci (dans le plan de la couche photosensible) induisent ainsi préférentiellement une migration latérale des molécules qui fuient les maxima de champ [13]. Les composantes longitudinales du champ incident (perpendiculaires au plan de

FIG. 2.11: Isomères des molécules d'azobenzène contenues dans le PMMA dopé DR1. A gauche : isomère "trans". A droite : isomère "cis".



la couche) conduisent en revanche à une migration verticale selon les maxima de champ de ces molécules d'azobenzène qui recherchent alors l'espace libre [34], [35]. Par conséquent, une polarisation transverse donne une topographie proportionnelle au négatif de l'intensité correspondante, alors qu'une polarisation longitudinale induit une topographie de même forme que l'intensité du champ qui lui est associée. En première approximation, nous avons donc choisi de décrire l'allure des motifs imprimés dans une couche de PMMA dopé DR1 par l'expression :

$$V = -E_{\text{tot}x} E_{\text{tot}x}^* - E_{\text{tot}y} E_{\text{tot}y}^* + E_{\text{tot}z} E_{\text{tot}z}^* \quad (2.21)$$

où  $E_{\text{tot}x}$ ,  $E_{\text{tot}y}$  et  $E_{\text{tot}z}$  sont respectivement les composantes  $x$ ,  $y$  (transverses) et  $z$  (longitudinale) du champ électrique d'interférences total insolant cette couche et où  $V$  pourrait ici être vu comme la réponse optique associée au PMMA dopé DR1.

Cette relation reste cependant une approximation. En effet, beaucoup d'études sont encore en cours afin de comprendre précisément les différents phénomènes impliqués dans la migration du PMMA dopé DR1 sous flux lumineux, études qui visent en particulier à décrire au niveau macroscopique les interactions entre les particules d'azobenzène et le champ incident [36]. Nous utiliserons néanmoins dans la suite cette expression simplifiée pour comparer l'allure des motifs obtenus expérimentalement à celle du champ d'interférences généré théoriquement par le masque.

Dans cette étude théorique, nous avons vu comment positionner les nanostructures sur le masque afin de générer un champ d'interférences efficace et nous avons ensuite donné des méthodes de calculs permettant de prédire la forme des motifs obtenus selon les types de résines insolées. Nous allons maintenant mettre en application ces concepts et nous intéresser à la démonstration expérimentale des performances de la technique de lithographie par interférence de plasmons de surface.

## 2.3 Réalisation expérimentale

Dans cette partie, nous allons donner quelques détails sur la fabrication des masques que nous avons réalisés afin de tester expérimentalement la technique de lithographie par interférence de plasmons de surface. Nous insisterons tout d'abord sur les différentes étapes technologiques mises en jeu, puis nous exposerons le montage optique simple que nous avons utilisé pour l'insolation.

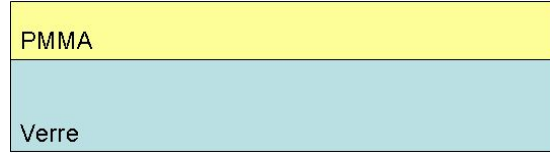
### 2.3.1 Etapes technologiques

Conformément aux géométries détaillées dans la partie précédente, les masques de lithographie que nous avons effectués consistent en une fine couche d'argent de 50 nm d'épaisseur, nanostructurée et déposée sur une lame de verre recouverte d'une couche de 150 nm de PMMA.

Les différentes étapes que nous avons suivies pour leur fabrication sont schématisées sur les figures 2.12 à 2.13 et 2.15 à 2.16.

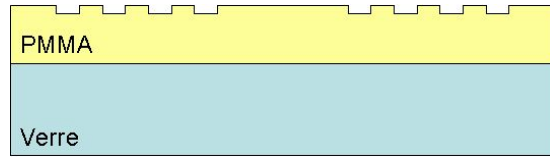
La première étape consiste à déposer la couche de PMMA sur la lame de verre préalablement nettoyée par ultrasons. Ce dépôt s'effectue par spin-coating à une vitesse de 4000 tours/min, technique qui permet d'obtenir une couche de polymère relativement uniforme. Celle-ci est alors durcie par un recuit de plusieurs heures à 160°C.

FIG. 2.12: **Etape 1 : Dépôt de 150 nm de PMMA sur un substrat de verre.** Ce dépôt s'effectue par spin-coating à une vitesse de 4000 tours/min.



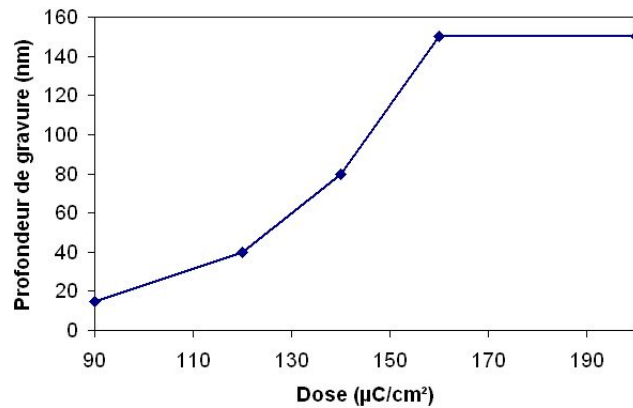
Afin de créer les nanostructures métalliques des masques, nous avons ensuite choisi une technique originale, qui revient à structurer non pas le métal mais la couche de PMMA située en dessous. Le principe consiste ici à graver cette couche avec une profondeur inférieure à l'épaisseur du film d'argent à insérer. En effet, le dépôt directif du métal sur les nanostructures polymères réalisées conduit dans ce cas à la formation d'un film d'argent continu de profil conforme à celui de la couche de PMMA et permet ainsi d'obtenir les nanostructures métalliques souhaitées.

FIG. 2.13: **Etape 2 : Nanostructuration de la couche de PMMA.** Cette étape s'effectue par le biais de l'exposition de cette couche par un faisceau d'électrons.



Le passage par une couche de PMMA intermédiaire pour effectuer les nanostructures d'argent possède plusieurs avantages. Le premier est qu'il permet d'avoir un masque d'argent continu nanostructuré sur deux faces, ce qui améliore l'efficacité d'excitation des plasmons. Le second est qu'il permet de réaliser des nanostructures métalliques en structurant le polymère et non pas la couche métallique, ce qui est beaucoup plus simple d'un point de vue technologique. Le PMMA peut en effet être très facilement gravé par lithographie électronique, avec des profondeurs de gravure qui peuvent être étalonnées en fonction de la dose d'insolation du faisceau d'électrons et/ou des temps de développement de la couche.

FIG. 2.14: **Courbe d'étalonnage des profondeurs de gravure d'une couche de 150 nm de PMMA par faisceau d'électrons en fonction de la dose d'insolation.** Le développement s'effectue dans chacun des cas par passage de l'échantillon pendant 45s dans du MIBK.



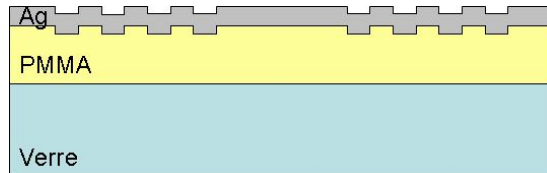
La figure 2.14 montre ainsi la variation des épaisseurs de PMMA gravées en fonction de la



dose d'exposition pour un temps de développement constant de 45s dans du méthylisobutylcétone (MIBK). Nous avons donc employé cette technique pour réaliser des motifs de PMMA de 20 nm de profondeur et de pas  $295 \text{ nm} = \lambda_{\text{sp}}$  (cas traité théoriquement dans la partie précédente pour une illumination en incidence normale à 532 nm) et espacés de  $3.5$  ou  $5.5\lambda_{\text{sp}}$ .

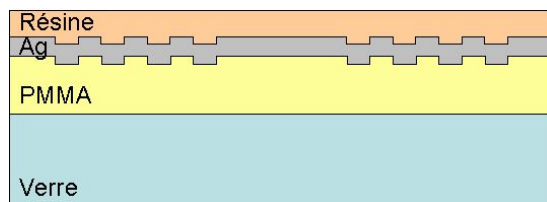
La dernière étape de fabrication de ces masques de lithographie consiste enfin à déposer le film métallique d'argent sur les nanostructures de PMMA. Ce dépôt est effectué par évaporation sous vide, procédé qui donne de très bons résultats en terme de directivité.

FIG. 2.15: **Etape 3 : Dépôt du film métallique d'argent.** Ce dépôt s'effectue par évaporation sous vide.



Afin de tester de manière simple les performances de ces masques de lithographie, nous avons ensuite choisi de déposer la couche de résine photosensible (ici le PMMA dopé DR1) directement sur les nanostructures métalliques réalisées. Cette solution permet en effet de s'affranchir de plusieurs problèmes liés à l'utilisation du champ proche et réduit notamment l'atténuation du champ d'interférences plasmonique généré au niveau de la zone d'observation (surface de la couche de résine).

FIG. 2.16: **Etape 4 : Dépôt de la couche de résine photosensible.** Ce dépôt s'effectue par spin-coating à une vitesse de 4000 tours/min.



Ce dépôt s'effectue par spin-coating à une vitesse de 4000 tours/min et conduit à une couche relativement uniforme de 70 nm d'épaisseur.

Nous avons ici détaillé les différentes étapes technologiques que nous avons suivies afin de fabriquer des masques de lithographie par interférence de plasmons de surface. Nous allons maintenant décrire le montage qui nous a permis d'insoler la couche de résine photosensible qui les recouvre et ainsi d'imprimer différents motifs.

### 2.3.2 Dispositif d'insolation

De même que dans les exemples et calculs théoriques effectués précédemment, le dispositif d'insolation que nous avons réalisé permet d'éclairer le masque de lithographie en incidence normale à 532 nm, longueur d'onde située dans la plage de sensibilité du PMMA dopé DR1. Un schéma de ce système d'illumination est présenté sur la figure 2.17.

Celui-ci se compose tout d'abord d'une diode laser à 532 nm qui fournit un faisceau incident gaussien de 2 mm de diamètre pour une puissance de quelques milliwatts. Le dispositif de lithographie à tester est ensuite directement placé dans la course de ce faisceau, l'éclairage se faisant du côté du substrat de verre et l'échantillon étant positionné de telle sorte que l'illumination s'effectue en incidence normale. Enfin, le temps d'exposition est contrôlé par un shutter manuel

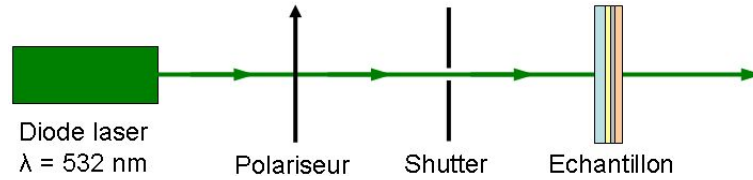


FIG. 2.17: **Schéma du montage d'illumination d'un masque de lithographie par interférence de plasmons de surface.** Il se compose d'une diode laser à 532 nm polarisée linéairement qui éclaire l'échantillon en incidence normale, la dose d'exposition étant contrôlée par un shutter manuel.

et a été fixé de manière à ce que la dose totale reçue par l'échantillon soit équivalente à une exposition de celui-ci pendant 20 minutes à une densité de puissance de  $100 \text{ mW/cm}^2$ , dose typique nécessaire à la migration des molécules d'azobenzène du PMMA dopé DR1 [13].

De plus, nous avons vu précédemment que la direction de polarisation du champ incident sur le masque de lithographie déterminait l'amplitude des plasmons contrapropagatifs excités par les réseaux métalliques qu'il contient et en particulier que cette excitation est maximale pour une polarisation perpendiculaire aux lignes de ces réseaux. Afin de contrôler cette polarisation et optimiser l'éclairage du dispositif, nous avons donc ajouté un polariseur en amont de l'échantillon. Plusieurs orientations ont ensuite été choisies, en fonction des types de réseaux présents sur le masque.

Pour des réseaux de lignes disjoints de même orientation, la polarisation a ainsi été fixée perpendiculaire à celles-ci. Cependant, nous avons également testé d'autres types de structures. Dans le but d'obtenir des figures d'interférences à quatre ondes, nous avons par exemple réalisé des jeux de quatre réseaux deux à deux perpendiculaires. Ces structures ont alors été éclairées par une polarisation incidente orientée à  $45^\circ$  des lignes des réseaux. En effet, cette configuration permet de décomposer l'amplitude du champ incident de manière égale sur les deux axes de ces structures et donc d'exciter avec la même efficacité les plasmons dans ces deux directions.

De même, afin de générer des plasmons contrapropagatifs selon une multitude de directions, nous avons réalisé des réseaux concentriques circulaires. La polarisation optimale pour l'éclairage de ce type de structure est la polarisation radiale car elle est en tout point perpendiculaire aux lignes du réseau. Toutefois, cette polarisation reste relativement difficile à obtenir expérimentalement. Nous avons donc choisi une solution alternative qui consiste à effectuer deux expositions successives identiques avec des polarisations perpendiculaires. En effet, si l'on considère la quantité d'énergie reçue par la couche photosensible, ces deux expositions sont complémentaires : une polarisation dirigée par exemple selon  $x$  excitera avec une amplitude maximale les plasmons se propageant selon cette direction et générera des plasmons se propageant selon les autres directions avec une amplitude d'autant plus faible que leur direction de propagation est éloignée de l'axe  $x$ , le cas extrême étant celui des plasmons se propageant selon la direction perpendiculaire  $y$ , qui ne seront pas excités. En revanche, l'effet sera inversé dans le cas d'une polarisation incidente orientée selon  $y$ . En cumulant ces deux insulations, l'amplitude totale d'excitation des plasmons selon toutes les directions sera donc identique. Même si ce raisonnement est faux en absolu (la phase des plasmons excités lors des deux expositions n'est pas la même), il reste correct en terme d'énergie totale transférée au polymère photosensible et peut être justifié dans notre cas par le fait que le PMMA dopé DR1 est sensible à l'intensité du champ.

Dans cette partie, nous avons décrit les conditions expérimentales que nous avons utilisées pour tester les performances de la lithographie par interférence de plasmons de surface. La fin de ce chapitre sera consacrée à la présentation des différents résultats que nous avons obtenus et à leur analyse comparative avec les profils donnés théoriquement par les calculs semi-analytiques du champ d'interférences généré.

## 2.4 Résultats

Comme nous l'avons mentionné au paragraphe précédent, nous avons testé plusieurs types de structures. Dans cette partie, nous détaillerons tout d'abord les résultats que nous avons obtenus avec des réseaux de lignes, nanostructures simples qui génèrent un champ d'interférences comprenant deux ondes plasmons contrapropagatives. Puis, nous montrerons d'autres motifs plus complexes, imprimés grâce à l'illumination de quatre réseaux deux à deux perpendiculaires et de réseaux concentriques circulaires.

### 2.4.1 Motifs unidirectionnels

Le masque associé aux résultats présentés dans ce paragraphe comporte deux réseaux de lignes disjoints de pas  $a = 295 \text{ nm} = \lambda_{\text{sp}}$  et espacés d'une distance  $D = 5.5\lambda_{\text{sp}} \simeq 1620 \text{ nm}$ . Une vue de dessus de ces structures avant exposition est donnée sur l'image de gauche de la figure 2.18.

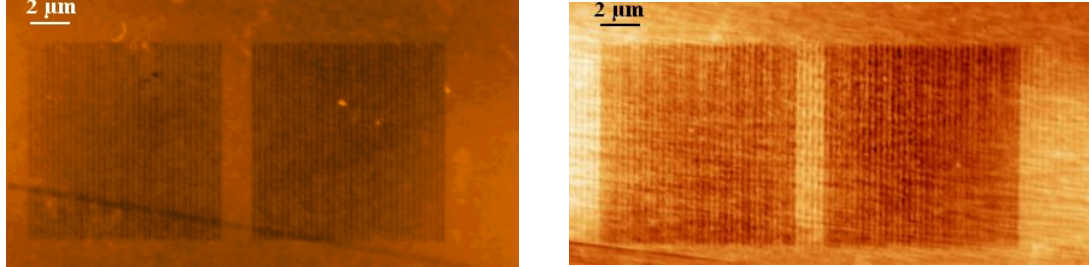


FIG. 2.18: **Topographie de la surface du PMMA dopé DR1 au voisinage de réseaux de lignes disjoints.** A gauche : image AFM avant exposition. A droite : image AFM après exposition. Cette dernière met en évidence la génération de franges rectilignes sur toute la zone concernée.

L'image de droite de cette même figure montre ensuite la topographie de cette zone après illumination des deux réseaux selon les conditions et le montage décrits précédemment. Cette image met clairement en évidence l'apparition de franges rectilignes de part et d'autre, sur et entre les réseaux, résultat qui démontre donc la génération d'un champ d'interférences par ces structures.

De plus, nous avons vu dans la partie théorique de ce chapitre que ce champ d'interférences est constitué des deux ondes plasmons contrapropagatives générées par les réseaux disjoints et du champ incident transmis à travers le film métallique et qu'il se caractérise par une série de lignes dont le pas peut être de  $\lambda_{\text{sp}}$  ou  $\lambda_{\text{sp}}/2$  selon le rapport de l'amplitude de ces deux types d'onde. Le haut de la figure 2.19 donne alors le profil des motifs imprimés au centre des réseaux disjoints dans la couche de PMMA dopé DR1. Même si la topographie reste faible, de l'ordre de

quelques nanomètres à une dizaine de nanomètres, ce profil montre effectivement une succession de lignes de pas environ 300 nm, c'est-à-dire  $\lambda_{sp}$ , chacune ayant tendance à se dédoubler.

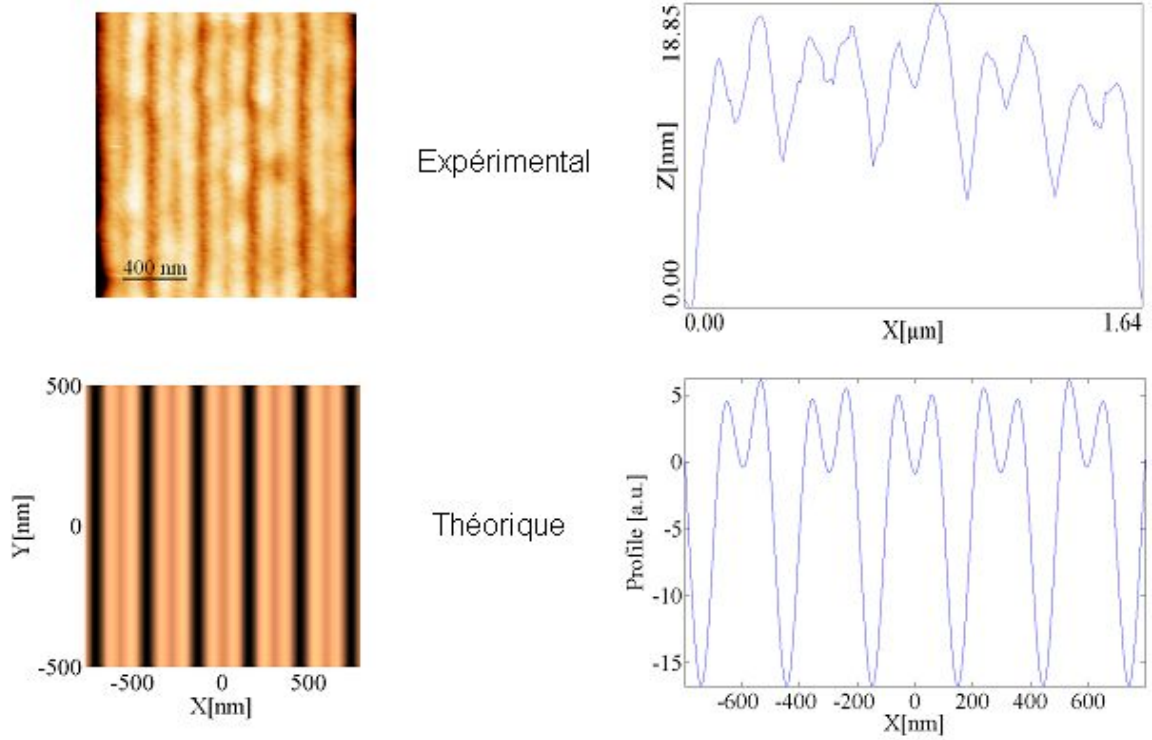


FIG. 2.19: Topographie expérimentale et théorique de la surface du PMMA dopé DR1 dans la zone centrale d'interférences située entre les réseaux de lignes disjointes. En haut : image AFM et profil de la surface de la résine après exposition. En bas : Calculs théoriques associés.

Afin d'expliquer ce résultat, nous avons alors calculé théoriquement l'allure des motifs attendus pour ce type de masque. Nous avons vu précédemment que le calcul du champ d'interférences généré dépend de l'indice effectif  $n_{\text{eff}}$  des plasmons excités, de la distance  $D$  séparant les sources de plasmons contrapropagatifs et des amplitudes  $A$  et  $A_0$  des différentes ondes en présence. Or, concernant  $n_{\text{eff}}$ , nous avons précisément déterminé le pas  $a$  des réseaux de manière à exciter un mode propre plasmon du système d'indice effectif  $n_{\text{eff}} = 1.795 + 0.035i$ . Ce paramètre est donc fixé. De même, nous avons choisi pour le calcul une distance  $D$  séparant les sources de plasmons égale à la distance séparant expérimentalement les réseaux disjointes. Les deux seules inconnues restent alors les amplitudes respectives des plasmons contrapropagatifs et du champ incident transmis. Le bas de la figure 2.19 présente le résultat de ce calcul théorique pour  $A = A_0 = 1$  et  $z = 70\text{nm}$  (observation du champ en surface de la couche de résine), où nous avons tracé la réponse optique  $V$  du PMMA dopé DR1 calculée selon l'expression (2.21). Le profil obtenu explique très bien l'allure des motifs imprimés expérimentalement dans la couche de résine. Ce résultat valide donc d'une part le modèle semi-analytique développé qui semble bien rendre compte des phénomènes physiques mis en jeu et d'autre part démontre la faisabilité de la technique de lithographie par interférence de plasmons de surface qui permet effectivement d'imprimer des motifs dans une couche photosensible.

Nous allons voir dans la suite que d'autres types de motifs peuvent également être effectués et être reliés de la même manière à la génération d'un champ d'interférences particulier.

### 2.4.2 Motifs bidirectionnels

Dans le but de générer un champ d'interférences constitué de quatre ondes plasmons contra-propagatives, nous avons ainsi réalisé un masque contenant quatre réseaux de lignes deux à deux perpendiculaires. L'image de gauche de la figure 2.20 montre une image AFM de ces structures recouvertes de la couche de PMMA dopé DR1 avant exposition. De même que dans l'exemple décrit au paragraphe précédent, ces réseaux sont espacés d'une distance  $D = 5.5\lambda_{sp} \simeq 1620$  nm.

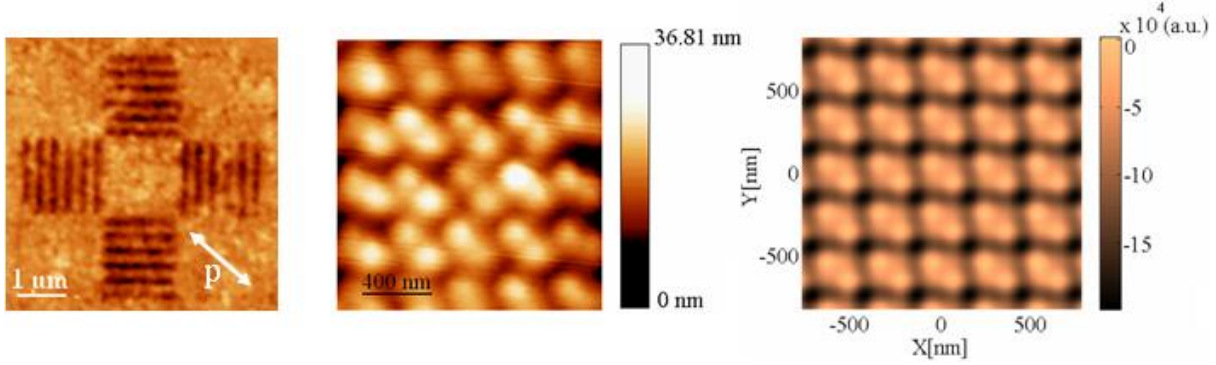


FIG. 2.20: **Résultats expérimentaux et théoriques de l'interférence de quatre ondes plasmons contra-propagatives perpendiculaires.** A gauche : image AFM des réseaux d'excitation avant exposition. La flèche représente la direction de la polarisation incidente. Au centre : image AFM du centre de la structure après exposition. A droite : allure des motifs imprimés d'après le calcul théorique du champ d'interférences généré.

L'image centrale de la figure 2.20 présente alors une image AFM de la topographie obtenue au centre de ces structures après leur illumination par un champ électrique orienté à  $45^\circ$  des lignes des réseaux. Celle-ci met en évidence l'impression d'une série de plots, qui, de même que dans le cas des lignes imprimées précédemment, possèdent un pas d'environ 300 nm et ont tendance à se dédoubler. Ce résultat s'explique ensuite très bien par le calcul du champ d'interférences généré par le masque. L'image de droite de la figure 2.20 donne en effet l'allure théorique des motifs imprimés dans la couche de PMMA dopé DR1. Il s'agit ici de la réponse optique  $V$  de ce polymère tracée pour un champ d'interférences dont la valeur a été obtenue en reprenant le calcul relatif à la superposition de quatre ondes plasmons contrapropagatives perpendiculaires détaillé dans la partie théorique de ce chapitre avec les valeurs des paramètres suivantes :  $A = 1$ ,  $A_0 = 0.5$ ,  $D = 5.5\lambda_{sp}$  et  $z = 70$  nm,  $n_{\text{eff}}$  restant inchangé. Le très bon accord observé entre les résultats expérimentaux et théoriques démontre une nouvelle fois la validité de ce modèle de calcul de champ. De plus, les motifs obtenus sont relativement complexes compte-tenu du masque utilisé, ce qui ouvre de larges perspectives quant à la réalisation de motifs variés par la technique de lithographie par interférence de plasmons de surface. Nous allons en voir un autre exemple au paragraphe suivant.

### 2.4.3 Motifs circulaires

Nous avons montré que l'emploi de réseaux concentriques permet en théorie d'exciter des plasmons selon une multitude de directions radiales et conduit donc à la formation d'un champ d'interférences qui résulte de la superposition de toutes ces ondes. Afin de tester ce type de structure, nous nous sommes intéressés dans cet exemple au cas particulier de réseaux concen-

triques circulaires et nous avons ainsi réalisé le masque correspondant dont une vue de dessus avant exposition est présentée sur l'image de gauche de la figure 2.21. Le disque central a ici un diamètre égal à  $3.5\lambda_{sp} \simeq 1030$  nm.

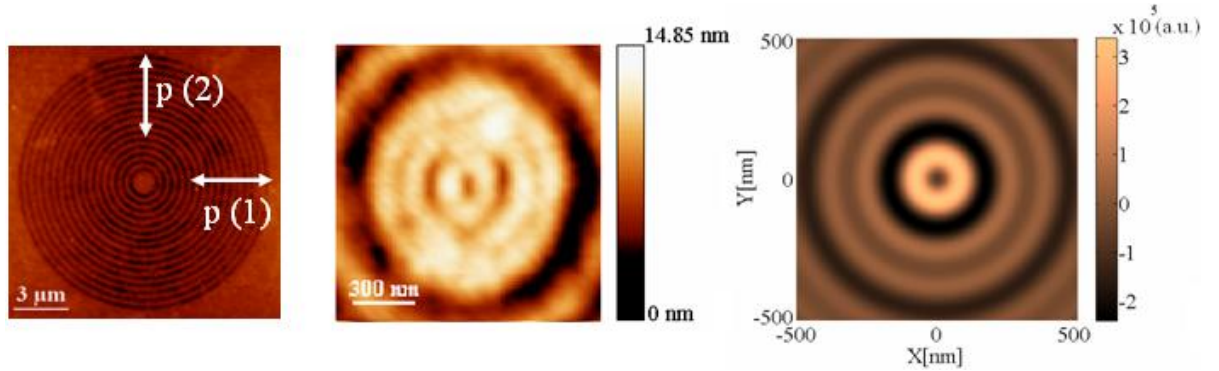


FIG. 2.21: **Résultats expérimentaux et théoriques de l'interférence d'une multitude d'ondes plasmons se propageant radialement selon toutes les directions.** A gauche : image AFM des réseaux d'excitation avant exposition. Les flèches représentent les directions de la polarisation incidente des deux expositions successives effectuées. Au centre : image AFM du centre de la structure après exposition. A droite : allure des motifs imprimés d'après le calcul théorique du champ d'interférences généré.

Nous avons ensuite éclairé ce masque de manière à exciter des plasmons de façon homogène selon toutes les directions radiales. Comme nous l'avons vu précédemment, nous avons pour cela effectué deux expositions successives à dose identique avec deux polarisations perpendiculaires. L'image centrale de la figure 2.21 montre alors la topographie obtenue au centre de ces réseaux après exposition. De même, l'image de droite de cette figure montre en comparaison l'allure des motifs attendus dans la couche de résine selon le calcul théorique du champ d'interférences correspondant à ce type de structure. Afin de respecter au maximum les conditions expérimentales, ce calcul a été effectué en sommant indépendamment les réponses optiques du PMMA dopé DR1 associées aux champs d'interférences générés par chaque exposition, ces derniers étant obtenus selon le raisonnement décrit dans la partie théorique précédente pour une polarisation incidente selon  $x$  puis  $y$  et avec  $A = 1$ ,  $A_0 = 0.25$ ,  $D = 3.5\lambda_{sp}$  et  $z = 70$  nm,  $n_{eff}$  étant toujours inchangé.

Ces deux images indiquent l'impression d'anneaux concentriques dans la couche de résine photosensible, dont le pas est de l'ordre de  $\lambda_{sp} = 295$  nm, résultat qui montre que des plasmons ont effectivement été générés selon toutes les directions radiales du masque. Cependant, les motifs expérimentaux présentent aussi une légère asymétrie que l'on ne retrouve pas dans le cas théorique. Plusieurs facteurs peuvent alors expliquer ce phénomène. Le premier peut être une légère différence de dose entre les deux expositions perpendiculaires, qui peut être due à des variations de puissance de la diode laser d'illumination. De même, des inhomogénéités du polymère photosensible et/ou des irrégularités de fabrication des réseaux métalliques peuvent également être à l'origine de ce phénomène. Néanmoins, la raison la plus probable reste le fait que les deux expositions successives ne sont pas indépendantes, comme supposé dans le calcul théorique. En effet, concernant la couche de PMMA dopé DR1, la matière a déjà commencé à se réorganiser lorsque la seconde exposition a lieu. En particulier, lors de la première exposition, les molécules d'azobenzène ont déjà eu tendance à fuir les maxima de champ, majoritairement situés au centre de la structure, phénomène qui a pour conséquence d'amincir le film polymère dans la

zone d'interférences pour la seconde exposition. Or, la réorganisation de matière dans la couche de PMMA dopé DR1 étant fortement dépendante de la quantité de molécules interagissant avec le champ incident [37], cette seconde exposition est donc moins efficace que la première, ce qui explique la plus faible topographie observée selon la direction de polarisation correspondante.

## 2.5 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons cherché à évaluer les performances et les limites d'une technique de lithographie en champ proche particulière, la lithographie par interférence de plasmons de surface. Cette démarche s'est effectuée d'une part d'un point de vue théorique où nous avons développé un modèle semi-analytique de calcul du champ d'interférences généré qui permet de prédire l'allure des motifs imprimés et d'autre part d'un point de vue expérimental où quelques tests simples ont démontré la faisabilité de cette technique.

Ces différentes approches nous amènent alors aux conclusions suivantes. Même si la lithographie par interférence de plasmons de surface reste une technique de champ proche qui nécessite donc encore plusieurs adaptations pour être exploitable autrement que par le dépôt de la résine photosensible à insoler directement sur le masque, ce procédé possède plusieurs avantages.

Son plus gros atout reste son coût et sa facilité de mise en oeuvre. Tandis que dans les techniques de lithographie actuelles le système de projection optique représente la moitié du coût du dispositif d'insolation (c'est-à-dire plusieurs millions d'euros), les lithographies que nous avons effectuées n'ont par exemple nécessité qu'une diode laser de faible puissance et un polariseur. Une simple lithographie électronique nous a également permis de fabriquer des masques conduisant à l'impression de motifs relativement complexes. Ainsi, cette technique de lithographie pourrait être particulièrement bien adaptée pour une utilisation individuelle à faible échelle.

Cependant, les performances obtenues ne permettent pas actuellement d'envisager une application industrielle, notamment en microélectronique, de la lithographie par interférences. Les nanostructures présentes sur le masque sont tout d'abord trop volumineuses par rapport à l'étendue effective de la zone d'insolation. De même, la résolution des motifs imprimés est insuffisante. Celle-ci est en effet intrinsèquement limitée au pas des franges d'interférences générées, au minimum égal à  $\lambda_{sp}/2$ . Dans le cas extrêmement favorable à la propagation des plasmons dans lequel nous nous sommes placés tout au long de ce chapitre, cela correspond par exemple à des largeurs individuelles de motifs (dans le cas de réseaux denses) de l'ordre de 75 nm, résolution déjà largement atteinte aujourd'hui par les techniques de lithographie à 193 nm. Comme nous le verrons à la fin de ce manuscrit, l'utilisation d'autres métaux et longueurs d'onde d'illumination pourrait permettre de générer des plasmons possédant une longueur d'onde effective plus faible. En revanche, cela se fait toujours au détriment de leurs distances d'atténuation dont la faible valeur empêche la plupart du temps la formation d'un champ d'interférences contrasté.

Afin de pallier ce problème et évaluer les performances réelles de la lithographie assistée par plasmons de surface en terme de résolution, nous avons alors cherché à développer un autre type de dispositif, conduisant en particulier à la génération d'un faisceau de très faibles dimensions. Le but de cette nouvelle technique serait d'élargir le champ d'application des plasmons pour la

lithographie en réalisant une source optique de champ proche qui pourrait permettre d'effectuer une lithographie point par point à haute résolution. C'est ce que nous allons détailler au chapitre qui suit.





## Chapitre 3

# Lithographie haute résolution point par point assistée par plasmons de surface

Nous avons vu dans le chapitre précédent que l'utilisation d'interférences de plasmons de surface permettait de réaliser une lithographie de motifs variés à bas coût, mais que la résolution de ces motifs était limitée, voire insuffisante pour certaines applications comme la microélectronique. Afin de répondre à ce problème de résolution tout en préservant le faible coût associé aux dispositifs de lithographie assistés par plasmons de surface, nous avons donc cherché à concevoir une source optique générant par le biais des plasmons un spot lumineux intense de très faibles dimensions. En effet, l'intérêt de ce type de source est qu'elle pourrait ensuite être utilisée de manière générique, par exemple pour effectuer une lithographie point par point à haute résolution. Dans ce chapitre, nous allons tout d'abord donner le principe de base de la nanosource que nous avons réalisée, puis nous présenterons les caractéristiques théoriques et expérimentales d'une première variante de ce dispositif. Enfin, nous décrirons plusieurs améliorations que nous avons apporté à ce système afin d'obtenir une source compacte et efficace.

### 3.1 Principe

Nous avons montré dans le chapitre précédent que la résolution limite de la technique de lithographie par interférence de plasmons de surface était, dans le cas des longueurs d'onde visibles, de l'ordre de 75 nm. Afin de dépasser cette limite, le but de cette étude est donc d'élaborer un dispositif optique efficace générant un spot lumineux intense d'au maximum quelques dizaines de nanomètres de diamètre. Plusieurs techniques ont déjà été développées afin de créer ce type de source. La première revient à utiliser une pointe ou un guide métallique dont la section diminue progressivement. L'excitation puis la propagation de plasmons sur ce type de structure conduit en effet au confinement de ceux-ci et aboutit alors à la formation d'un point chaud localisé en bout de pointe [38], [39]. Même si le résultat est très concluant (le diamètre du spot obtenu peut en théorie descendre jusqu'à quelques nanomètres), ce dispositif reste difficile à réaliser expérimentalement et possède un mauvais rendement. De même, la focalisation de plasmons de

surface a également été envisagée, notamment pour des applications en optique guidée [40], [41]. Cependant, la dimension du spot réalisé est au minimum de quelques centaines de nanomètres, ce qui est trop important compte-tenu des performances visées par notre dispositif. Afin de réaliser une source optique de faibles dimensions, nous avons donc retenu une autre solution, qui consiste à exploiter la transmission de lumière obtenue au travers d'ouvertures sub-longueur d'onde percées dans des films métalliques. Le plus gros avantage de cette technique est qu'elle n'est pas limitée en terme de résolution. En effet, plus l'ouverture réalisée sera petite, plus le spot lumineux généré en sortie de cette source sera petit. De plus, ce type de dispositif reste relativement facile à effectuer expérimentalement, puisque pour des largeurs supérieures à quelques dizaines de nanomètres, ces ouvertures peuvent être obtenues directement par perforation d'un film métallique par un faisceau d'ions focalisé (FIB).

L'image de gauche de la figure 3.1 montre ainsi un exemple de ce type de structure. Il s'agit d'une simulation en deux dimensions effectuée par la méthode des éléments finis (logiciel commercial Comsol) sur une fente de 30 nm de largeur percée dans un film d'argent ( $n = 0.05 + 3.43i$  à 532 nm) de 60 nm d'épaisseur. Ce film est placé dans l'air et est éclairé en incidence normale par une onde plane à une longueur d'onde de 532 nm polarisée perpendiculairement à l'axe de la fente.

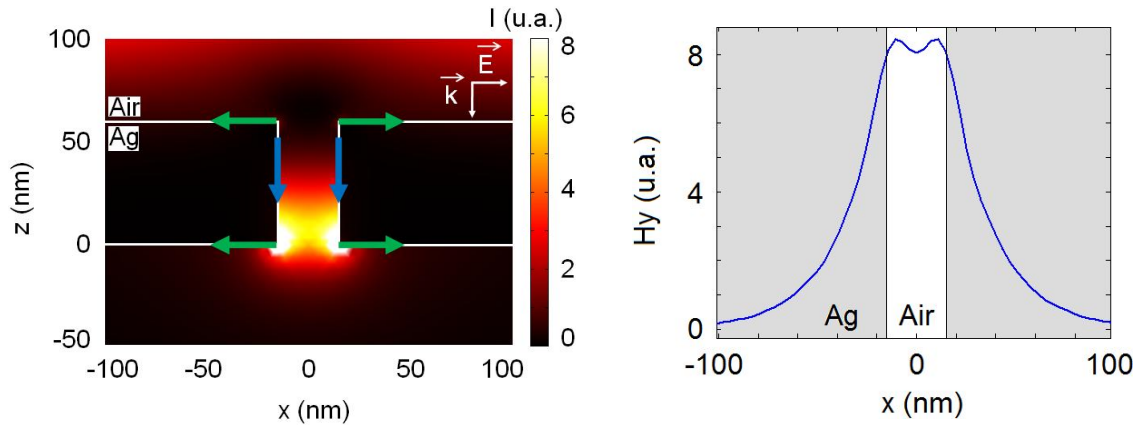


FIG. 3.1: **Illustration de la transmission à travers une fente sub-longueur d'onde percée dans un film métallique.** A gauche : Carte de l'intensité du champ dans la structure éclairée en incidence normale par une onde plane à 532 nm polarisée selon  $x$ . La direction de propagation des différents modes plasmon excités est représentée par des flèches. A droite : allure du champ magnétique du mode propre plasmon de la fente (flèches bleues dans l'image de gauche).

La carte de champ obtenue met effectivement en évidence la formation d'un spot lumineux en sortie de la fente. D'un point de vue physique, plusieurs travaux ont ensuite montré que cette transmission était due à l'excitation d'un plasmon à l'intérieur de celle-ci [42], [43], mode que nous avons représenté par les flèches bleues sur la simulation. Afin d'obtenir les caractéristiques de celui-ci, nous avons alors utilisé le code RCWA introduit au chapitre précédent. Celui-ci indique bien l'existence d'un mode propre plasmon au sein de la fente, dont l'indice effectif est  $n_{\text{eff}} = 1.69 + 0.01i$ . L'allure du champ magnétique associé à ce mode est également présenté à droite de la figure 3.1. Il s'agit d'un mode symétrique (pair).

Cependant, ce calcul de modes propres indique aussi l'existence d'un autre mode plasmon

qui s'étend de part et d'autre des surfaces du film métallique perforé (mode schématisé par les flèches vertes sur la carte de champ). Or, nous avons vu précédemment que l'illumination d'un élément diffractant permettait d'augmenter le vecteur d'onde de l'onde lumineuse incidente et d'exciter des plasmons, majoritairement selon la direction de polarisation de celle-ci. La fente étudiée étant ici largement sub-longueur d'onde, l'illumination de cet élément selon les conditions détaillées ci-dessus favorise donc l'excitation de plasmons à la surface du film métallique, ondes qui se propagent alors le long de celui-ci. Ce calcul montre ainsi que l'énergie contenue dans l'onde lumineuse incidente alimente deux processus différents : d'une part, elle est transmise à travers l'ouverture et forme le spot lumineux obtenu en sortie, mais d'autre part, elle est transférée aux plasmons se propageant le long du film métallique, phénomène qui constitue une perte pour un dispositif dont l'objectif est la génération d'un point chaud intense et localisé.

Le principe de la source que nous allons détailler dans ce chapitre consiste donc à réduire ces pertes intrinsèques, notamment en confinant les plasmons excités dans la structure au voisinage de l'ouverture sub-longueur d'onde. Dans la suite, nous insisterons tout d'abord sur les résultats que nous avons obtenus en insérant en amont de cette ouverture une cavité utilisant des miroirs de Bragg plasmoniques pour réfléchir les plasmons générés. Nous donnerons quelques éléments théoriques relatifs à la géométrie de ce type de structure, puis nous indiquerons la démarche que nous avons suivie afin de l'optimiser et obtenir un spot lumineux d'intensité, de contraste et de confinement maximaux. Enfin, nous montrerons des résultats expérimentaux qui valident le fonctionnement de ce dispositif.

De même que dans le chapitre précédent et pour les mêmes raisons que précédemment (recherche des performances et des limites intrinsèques des dispositifs, facilité de fabrication), nous avons choisi pour cette étude une longueur d'onde d'illumination de 532 nm. De même, nous avons pris l'argent comme métal supportant les plasmons et réalisé nos structures sur un substrat de verre recouvert d'une épaisse couche de PMMA.

## 3.2 Structure de base

Dans cette partie, nous allons nous intéresser à une première géométrie d'une nanosource conduisant à la génération d'un spot lumineux intense et localisé. Le but de cette étude est de donner les grands principes de fonctionnement de ce type de structure et ainsi de fixer les bases sur lesquelles s'appuiera la deuxième partie de ce chapitre consacrée à l'amélioration des performances de cette nanosource.

### 3.2.1 Etude théorique

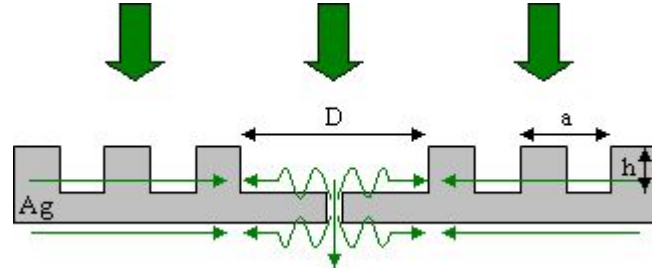
Une des solutions les plus simples pour éviter la propagation d'ondes électromagnétiques en dehors d'une zone restreinte consiste à réfléchir ces ondes de manière à ce qu'elles restent confinées dans la zone considérée. C'est l'effet de cavité. Afin de limiter les pertes dans le dispositif décrit précédemment, nous avons donc introduit des miroirs pour plasmons autour de la fente sub-longueur d'onde. La réflexion des plasmons générés par la fente sur ces miroirs conduit en effet à concentrer ce champ au voisinage de l'ouverture, ce qui possède un double avantage.

Cette configuration réduit tout d'abord les pertes au sein de la structure. De plus, elle augmente également la probabilité que les plasmons générés puis réfléchis se couplent avec le mode propre plasmon de la fente et renforcent ainsi l'intensité du spot lumineux de sortie. Ce phénomène permet donc aussi d'améliorer le rendement du système. Dans le paragraphe suivant, nous allons revenir sur les propriétés de ces miroirs pour plasmons, propriétés qui nous permettront ensuite de proposer une première géométrie pour cette nanosource.

### 3.2.1.1 Première géométrie

Des travaux ont en effet montré, par analogie avec les miroirs de Bragg classiques constitués d'une alternance de couches diélectriques d'épaisseurs adaptées ( $\lambda/4$  où  $\lambda$  est la longueur d'onde d'illumination), qu'une alternance de couches de métal et de diélectrique pouvait réfléchir des plasmons [44]. Plus précisément, ces "miroirs de Bragg pour plasmons" consistent en des réseaux métalliques dont le pas est égal à la moitié de la longueur d'onde des plasmons à réfléchir, périodicité qui rappelle effectivement celle des miroirs de Bragg classiques égale à  $\lambda/2$ . La figure 3.2 présente alors un schéma en coupe de la structure que nous avons étudiée. Comme précisé précédemment, il s'agit d'une fente percée dans un film d'argent, fente que nous avons ensuite entourée d'un réseau de lignes du même métal de pas  $a$  et de profondeur  $h$  et jouant le rôle de miroirs pour les plasmons générés de part et d'autre du film par l'illumination de celle-ci. Quelques règles peuvent alors être données concernant cette géométrie.

FIG. 3.2: **Schéma en coupe de la nanosource avec cavité à miroirs de Bragg.** L'illumination d'une fente percée dans un film métallique d'argent génère des plasmons qui sont confinés au voisinage de l'ouverture par des miroirs de Bragg pour plasmons entourant la fente.



En effet, nous venons de voir que le pas de ces réseaux dépend directement de la longueur d'onde des plasmons qu'ils doivent réfléchir. Afin de fixer cette dimension, nous avons donc effectué un calcul RCWA des modes propres plasmons supporté par le film métallique. Le dispositif étant réalisé sur un substrat de verre recouvert d'une couche de PMMA, nous avons considéré pour ce calcul l'empilement suivant : verre ( $n = 1.48$ , d'épaisseur  $3\lambda$ ), PMMA ( $n = 1.49$ , d'épaisseur  $150$  nm), argent ( $n = 0.05 + 3.43i$ ) qu'on choisit d'épaisseur  $e = 50$  nm. L'air est ici choisi comme milieu de sortie (d'épaisseur  $3\lambda$  pour le calcul), l'ensemble étant alors éclairé à une longueur d'onde  $\lambda$  de  $532$  nm en polarisation TM. Ces calculs indiquent effectivement la présence d'un mode propre plasmon, d'indice effectif  $n_{\text{eff}} = 1.67 + 0.01i$ , ce qui correspond à une longueur d'onde  $\lambda_{\text{sp}} \simeq 320$  nm. Par conséquent, nous avons fixé le pas de ces réseaux métalliques à  $a = \lambda_{\text{sp}}/2 \simeq 160$  nm.

Concernant ensuite le positionnement relatif de ces réseaux de lignes, la figure 3.2 montre que ceux-ci forment une cavité de largeur  $D$  autour de la fente. Or, le spot lumineux généré en sortie de celle-ci sera d'autant plus intense que la quantité de champ susceptible de se coupler avec

le mode propre plasmon qu'elle supporte sera important, c'est-à-dire que le champ présent au voisinage de l'ouverture sera important. Cela implique en particulier que les plasmons générés par la fente et ceux réfléchis par les réseaux soient en phase. Le rendement de la nanosource sera donc d'autant meilleur que la cavité réalisée par ces réseaux conduira à l'établissement d'interférences constructives entre ces deux ondes. Des travaux ont montré que cela correspondait à une largeur de cavité égale à un nombre entier de la moitié de la longueur d'onde des plasmons qui interfèrent, soit  $D = p\lambda_{\text{sp}}/2$ , avec  $p$  un entier [45]. Nous avons donc choisi pour la suite  $D = \lambda_{\text{sp}} \simeq 320$  nm. Enfin, afin de compléter cette première géométrie de nanosource, nous avons aussi dans un premier temps fixé la profondeur des réseaux de Bragg pour plasmons  $h$  à 50 nm et pris une largeur de fente de 30 nm, l'épaisseur  $e$  du film d'argent étant toujours de 50 nm.

Dans cette partie, nous avons montré comment dimensionner et positionner des miroirs de Bragg pour plasmons au voisinage d'une ouverture sub-longueur d'onde de manière à réaliser une nanosource dont les pertes sont réduites. Toutefois, la géométrie que nous avons obtenue reste relativement basique. En effet, nous nous sommes en particulier appuyés sur un calcul de modes propres effectué sur un empilement plan et nous n'avons par exemple pas tenu compte de l'influence des miroirs de Bragg sur la longueur d'onde des plasmons effectivement supportés par la structure. Afin d'adapter les dimensions de ce premier dispositif au cas réel et ainsi améliorer ses performances, nous avons donc cherché à optimiser les paramètres géométriques de celui-ci. La démarche et les résultats que nous avons obtenus sont présentés au paragraphe suivant.

### 3.2.1.2 Optimisation

Le but de cette optimisation est d'améliorer les caractéristiques du spot lumineux généré par la géométrie de base introduite précédemment. Le principe consiste donc à rechercher les dimensions de la structure précédente pour lesquelles l'intensité, le contraste et le confinement de ce spot sont les plus élevés. Nous allons ici détailler la démarche que nous avons développée, les codes associés à ces calculs étant donnés en annexe.

La première étape de cette optimisation consiste tout d'abord à calculer le champ électromagnétique présent dans la structure, calcul dont on pourra ensuite extraire les différentes caractéristiques du spot lumineux généré. De même que dans les cas précédents, nous avons effectué cette simulation en deux dimensions par la méthode des éléments finis (logiciel Comsol) et en éclairant la structure par le biais d'une onde plane de longueur d'onde 532 nm et de polarisation TM. Cependant, afin de faciliter la modification des paramètres géométriques de la nanosource lors de l'optimisation, ce calcul a été scripté sous Matlab (fichier *Calcul-structure-2D* en annexe). A partir de cette carte de champ, nous avons alors obtenu les caractéristiques du spot lumineux généré en modélisant l'intensité du champ en sortie du dispositif par une courbe de Gauss, courbe dont l'allure décrit assez bien les profils de champ effectivement rencontrés. L'équation que nous avons utilisée est la suivante :

$$I(x) = (I_{\text{max}} - I_{\text{min}}) \exp\left(\frac{-4x^2}{\Phi_{\text{spot}}^2}\right) + I_{\text{min}}$$

La détermination numérique des paramètres de cette équation donne en effet directement l'intensité  $I_{\text{max}}$  et la largeur  $\Phi_{\text{spot}}$  à  $1/e$  du faisceau de sortie de la source, le contraste de celui-ci

pouvant également être facilement calculé par la relation :

$$C = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}}$$

L'extraction de ces différents paramètres à partir de la carte de champ de la structure obtenue par la méthode des éléments finis est réalisée par les programmes *Extraction-parametres-2D*, *Gaussienne-2D* et *Residus-2D* donnés en annexe. Néanmoins, il faut noter qu'afin de limiter l'influence des effets de pointe excités par les coins de l'ouverture sub-longueur d'onde sur le profil de champ, nous avons ici choisi d'évaluer l'intensité du spot lumineux à 10 nm de la sortie de la fente.

La seconde étape consiste alors à insérer cette première phase de calcul dans une boucle d'optimisation. En effet, celle-ci permettra, au terme de plusieurs itérations, d'aboutir à un spot de sortie d'intensité, de contraste et de confinement maximaux. Par souci de simplicité et pour limiter le temps de calcul relatif à cette boucle, nous avons ici utilisé une méthode d'optimisation locale à base de simplex. Cette étape allie ainsi d'une part la modification pas à pas de quelques dimensions critiques de la géométrie et d'autre part la réalisation en parallèle du calcul dans ces nouvelles structures du champ électromagnétique et des propriétés du spot lumineux généré.

Dans la pratique, cette optimisation consiste à rechercher les dimensions de la source conduisant à la minimisation d'une fonction de mérite. Afin d'obtenir les meilleures caractéristiques possibles pour le spot lumineux de sortie, nous devons donc élaborer une fonction dont la valeur devient de plus en plus négative au fur et à mesure que l'intensité et le contraste de celui-ci augmentent et que son diamètre diminue. Nous avons alors choisi une fonction de la forme (fichier *Fonction-merite-2D*) :

$$f = -\frac{I_{\max}}{I_{\max}^0} - \frac{C}{C^0} + \frac{\Phi_{\text{spot}}}{\Phi_{\text{spot}}^0}$$

où  $I_{\max}^0$ ,  $C^0$  et  $\Phi_{\text{spot}}^0$  sont respectivement l'intensité, le contraste et la taille d'un spot lumineux de référence, choisi ici comme étant celui généré par la source initiale avant optimisation.

L'optimisation (fichier *Calcul-optimisation-2D*) s'effectue ensuite sur les quatre principaux paramètres de la géométrie métallique : le pas  $a$  et la profondeur  $h$  des réseaux, la largeur  $D$  de la cavité et l'épaisseur  $e$  du film métallique. Le résultat final est présenté sur la figure 3.3.

D'un point de vue géométrique, la structure obtenue reste tout d'abord assez proche de la structure de base effectuée au paragraphe précédent. En effet, celle-ci se compose toujours d'une fente de 30 nm de largeur percée dans un film métallique d'argent de 50 nm d'épaisseur et entourée d'un réseau du même métal. Néanmoins, les dimensions de ce réseau diffèrent légèrement de celles prévues initialement. Ainsi, celui-ci est trouvé optimal pour un pas  $a$  de 150 nm et une profondeur  $h$  de 75 nm (au lieu de respectivement 160 et 50 nm), variations qui peuvent s'expliquer par le fait que la première géométrie a été réalisée sur la base d'un empilement plan alors que l'optimisation tient compte de l'ensemble de la structure. De même, la largeur optimale  $D$  de la cavité que forme le réseau est trouvée égale à 305 nm, ce qui correspond environ au double du pas des réseaux optimisés. Ces valeurs, qui sont en accord avec les principes physiques énoncés précédemment (c'est-à-dire  $a = \lambda_{\text{sp}}/2$  et  $D = p\lambda_{\text{sp}}/2$  où  $p$  est un entier), indiqueraient ainsi que la longueur d'onde effective des plasmons excités dans la structure complète est proche de 300 nm.

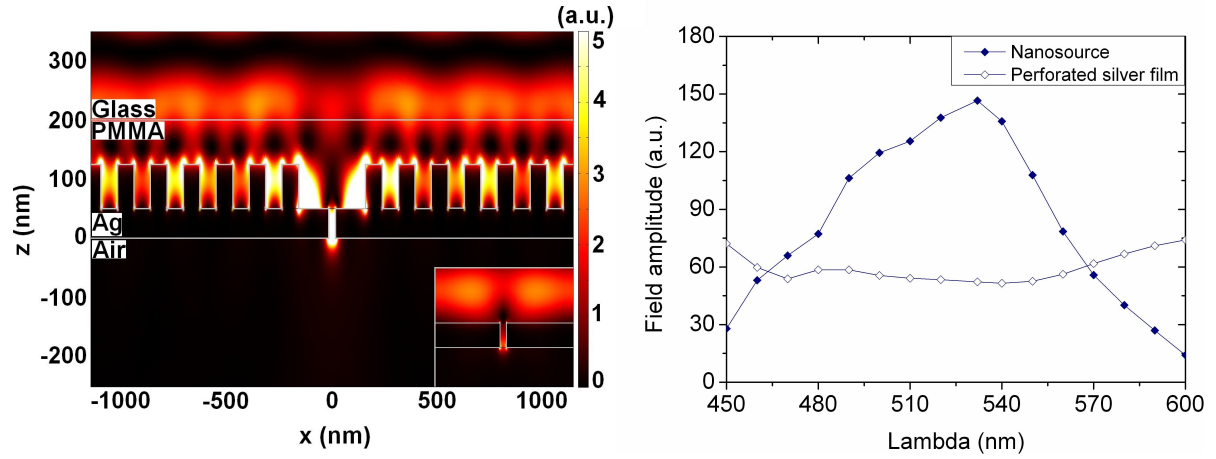


FIG. 3.3: **Caractéristiques de la nanosource après optimisation.** A gauche : carte de l'intensité du champ dans la structure. La simulation est réalisée en deux dimensions par la méthode des éléments finis en éclairant le dispositif par une onde plane à 532 nm polarisée TM. Pour comparaison, l'encart à droite montre la même simulation effectuée dans le cas d'une fente isolée. A droite : amplitude du champ à 100 nm de la sortie de la fente en fonction de la longueur d'onde. Le résultat correspondant à la source sans les miroirs de Bragg est également donné comme référence.

Du point de vue des performances, cette source possède ensuite plusieurs caractéristiques. L'image de gauche de la figure 3.3 montre tout d'abord une simulation par la méthode des éléments finis de la structure éclairée par une onde plane de longueur d'onde 532 nm et polarisée perpendiculairement à l'axe de la fente. La carte d'intensité du champ obtenue ici met bien en évidence la génération d'un point chaud intense et localisé en sortie de l'ouverture. Celle-ci valide donc le fonctionnement de ce système en tant que nanosource. De plus, l'image de droite de la figure 3.3 illustre également l'intérêt et les performances de la cavité réfléchissante mise en place. Ce spectre indique en effet une augmentation de près d'un facteur 3 de l'amplitude du spot obtenu à 100 nm de la sortie de la fente par rapport à un film perforé seul. Ce graphe montre aussi le caractère résonant de cette cavité, phénomène qui n'apparaît pas dans le cas d'une fente unique. Ces propriétés d'amplification de champ et de sélectivité spectrale sont particulièrement intéressantes concernant les utilisations de cette source. En effet, nous verrons dans la suite qu'elles peuvent par exemple permettre d'élargir le champ d'applications de ce type de dispositif au-delà de celui de la lithographie, notamment vers les domaines des capteurs ultrasensibles ou de l'imagerie. Nous y reviendrons. Enfin, le tableau 3.1 donne les caractéristiques du faisceau de sortie de la nanosource pour cette structure avant et après optimisation.

TAB. 3.1: Récapitulatif des caractéristiques des spots lumineux générés en sortie de la nanosource avant et après optimisation. Les valeurs correspondent à l'intensité du champ calculée à 10 nm de la sortie de la fente.

Caractéristiques	Avant optimisation	Après optimisation
Intensité maximale (u.a.)	1	1,27
Contraste (pourcents)	95,6	95,8
Diamètre à 1/e (nm)	66	70



Celles-ci indiquent que la démarche que nous avons effectuée a permis de gagner près de 30 pourcents en terme d'intensité et que celle-ci aboutit en définitive à une source générant un spot lumineux de l'ordre de 70 nm de diamètre pour un contraste en intensité de plus de 95 pourcents.

Dans cette étude théorique, nous avons montré comment positionner une cavité réfléchissante au voisinage d'une ouverture sub-longueur d'onde afin de réaliser une source lumineuse de faibles dimensions et dont les pertes sont réduites. Afin de compléter cette étude et achever la validation du dispositif effectué, nous avons alors cherché à le réaliser expérimentalement. C'est ce que nous allons voir dans la suite.

### 3.2.2 Réalisation expérimentale

Dans cette partie, nous allons donner quelques précisions relatives à la fabrication de la source décrite précédemment, puis nous détaillerons les résultats que nous avons obtenus lors de l'utilisation de celle-ci comme dispositif d'insolation d'une couche de résine photosensible.

Cependant, plusieurs remarques doivent tout d'abord être effectuées concernant la géométrie de la source que nous avons testée. En effet, l'étude réalisée précédemment correspond à un milieu de sortie constitué d'une couche d'air. Or, le test de cette source pour des applications en lithographie nécessite d'insérer une couche de résine photosensible en sortie de ce système, ce qui modifie cette structure et a en particulier une influence sur les caractéristiques des plasmons supportés au sein de celle-ci. Afin de tester ce dispositif dans les meilleures conditions possibles, nous avons donc relancé la boucle d'optimisation précédente pour un milieu de sortie d'indice  $n = 1.69 + 0.015i$  (indice du PMMA dopé DR1, résine que nous avons utilisée dans la suite lors de nos essais expérimentaux). Nous avons ainsi obtenu les dimensions finales de la source :  $a = 165$  nm,  $h = 80$  nm et  $D = 295$  nm pour les réseaux réfléchissants,  $e = 45$  nm pour l'épaisseur du film métallique perforé.

De même, l'étude théorique précédente a été menée à partir de calculs électromagnétiques en deux dimensions. Or, dans le but de se rapprocher au maximum d'une source utilisable de manière universelle, nous avons cherché expérimentalement à tester une structure à géométrie circulaire. Par souci de simplicité, nous avons pour cela choisi de conserver les bases de la géométrie en deux dimensions calculée précédemment, puis étendu cette structure en trois dimensions en lui appliquant une symétrie de révolution. Même si les modes électromagnétiques sont différents pour ces deux types de configurations, nous faisons donc ici l'hypothèse que compte-tenu des incertitudes expérimentales introduites lors de la fabrication de la structure, ce passage en trois dimensions influencera peu le résultat final et permettra au minimum de démontrer qualitativement le fonctionnement du dispositif réalisé.

#### 3.2.2.1 Etapes technologiques

La nanosource telle qu'elle a été décrite dans les paragraphes précédents peut alors être considérée comme un film d'argent de 45 nm d'épaisseur, perforé, nanostructuré et déposé sur un substrat de verre recouvert d'une couche de 150 nm de PMMA. La fabrication de cette structure a nécessité plusieurs étapes que nous allons détailler. De même que lors de la fabrication des

masques de lithographie par interférences présentée au chapitre précédent, nous avons ici choisi de réaliser les nanostructures métalliques d'argent en structurant en priorité la couche de PMMA, puis en déposant une couche plane d'argent sur la topographie effectuée.

Les deux premières étapes de cette fabrication sont donc relativement analogues à celles données dans le chapitre précédent. Nous avons tout d'abord déposé une couche de 150 nm de PMMA sur une lame de verre. De même que précédemment, ce dépôt s'est effectué par spin-coating à une vitesse de 4000 tours/min et a été suivi d'un recuit à 160°C pendant plusieurs heures. La seconde étape consiste alors à graver cette couche par lithographie électronique afin de définir les motifs qui, recouverts de la couche d'argent, vont constituer les miroirs de Bragg pour plasmons. Nous avons vu au paragraphe précédent que ces réseaux possèdent une profondeur  $h$  de 80 nm. Or, la courbe d'étalonnage de la figure 2.14 indique que cette profondeur de gravure est atteinte dans la couche de PMMA pour une dose d'insolation par faisceau d'électrons de  $140 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  et un développement de 45s dans du MIBK. Par conséquent, nous avons choisi ces conditions et obtenu après développement la topographie présentée figure 3.4.

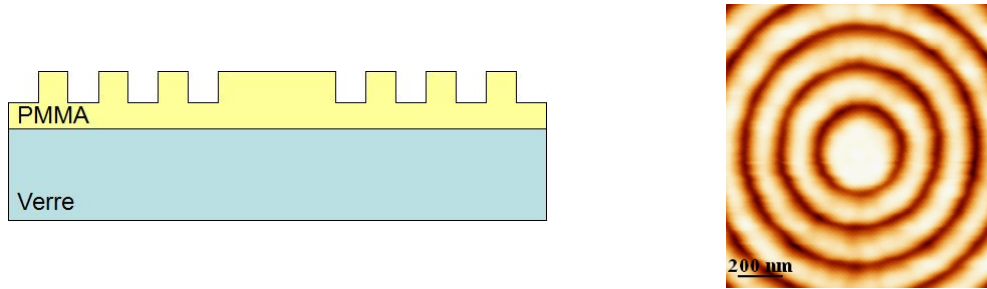


FIG. 3.4: **Etape 1 : nanostructuration de la couche de PMMA.** A gauche : schéma en coupe de la structure. A droite : topographie AFM de la surface après exposition du PMMA par faisceau d'électrons et développement. La mesure AFM de la hauteur de ces réseaux en bord de structure indique effectivement une gravure du PMMA de 80 nm.

L'étape suivante consiste ensuite à déposer le film métallique d'argent sur ces nanostructures de PMMA. Cependant, l'épaisseur de ce film varie selon la zone considérée. En effet, la géométrie détaillée précédemment montre que l'épaisseur d'argent est de 125 nm au niveau des futurs miroirs de Bragg (remplissage des espaces de PMMA gravés) contre seulement 45 nm au centre de la structure (emplacement de la cavité). Nous avons alors envisagé plusieurs techniques afin d'obtenir cette structure finale. La première consiste par exemple à effectuer deux dépôts directionnels localisés d'épaisseurs différentes. Néanmoins, cette solution reste difficile à mettre en oeuvre puisqu'elle nécessite un masquage partiel de l'échantillon et implique en particulier la superposition et l'alignement de plusieurs étapes de lithographie. Une seconde technique consiste aussi à déposer l'épaisseur maximale de métal sur l'ensemble de la structure, puis à éliminer le surplus présent au centre de celle-ci par polissage. Cependant, de même que dans le cas précédent, cette solution reste particulièrement délicate et n'a donc pas été retenue. La dernière possibilité que nous avons finalement choisie revient alors à jouer sur la directivité du dépôt de manière à former un film d'argent continu au dessus des nanostructures de PMMA tout en ne déposant que 45 nm de métal dans la zone plane centrale. En effet, les gravures de PMMA ayant un rapport de forme de 1 (80 nm de profondeur pour 80 nm de largeur environ), un dépôt oblique

de 64 nm de métal selon un cône dont l'axe fait un angle de  $45^\circ$  avec la surface de l'échantillon permet de combler ces gravures tout en ne déposant qu'une épaisseur de  $64/\sqrt{2} = 45$  nm sur les surfaces planes de l'échantillon. En pratique, nous avons effectué ce dépôt par évaporation sous vide en inclinant l'échantillon de  $45^\circ$  par rapport à la direction du dépôt et en maintenant celui-ci en rotation durant tout le processus. La figure 3.5 donne alors une image AFM de la surface de l'échantillon après ce dépôt métallique.

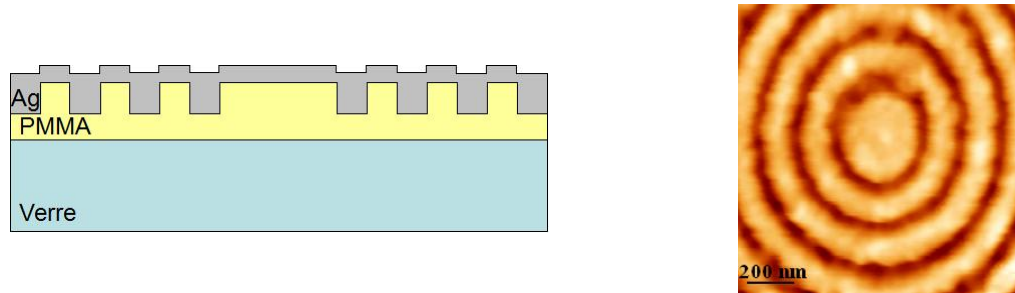


FIG. 3.5: **Etape 2 : dépôt d'argent sur les nanostructures de PMMA.** A gauche : schéma en coupe de la structure. A droite : topographie AFM de la surface après le dépôt.

La topographie obtenue confirme bien la génération des nanostructures d'argent et donc la formation des miroirs de Bragg pour plasmons. Toutefois, la comparaison des images AFM effectuées avant (figure 3.4) et après (figure 3.5) ce dépôt indique aussi que celui-ci introduit une rugosité supplémentaire à la surface de l'échantillon.

Enfin, la dernière étape de fabrication de cette source revient à percer le film métallique de manière à constituer l'ouverture sub-longueur d'onde au niveau de laquelle va être formé le spot lumineux de sortie. Nous avons effectué cette perforation par le biais d'un faisceau d'ions focalisé (équipement de l'ITEMN à Lille) et nous avons ainsi obtenu la structure présentée figure 3.6.

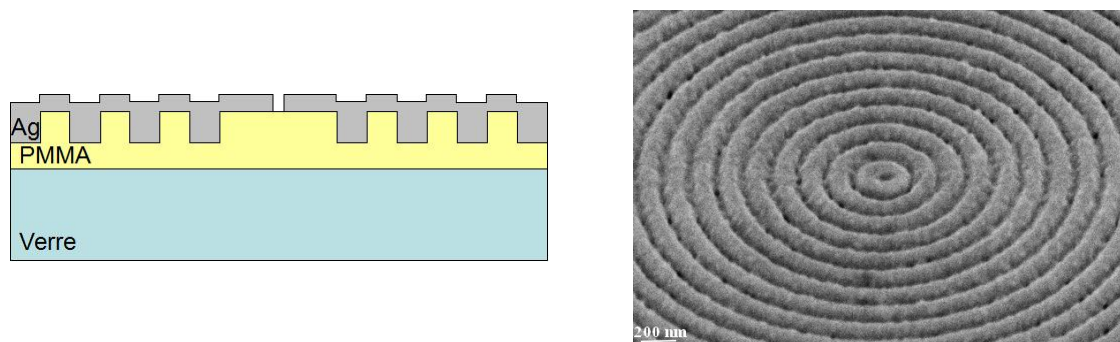


FIG. 3.6: **Etape 3 : perforation du film métallique d'argent par faisceau d'ions focalisé.** A gauche : schéma en coupe de la structure. A droite : image MEB de la source.

Cette image prise au microscope électronique à balayage (MEB) montre en effet la topographie de la surface du film d'argent après cette étape et fait notamment bien apparaître les différentes composantes géométriques de la source, comme les réseaux métalliques. Cette image permet également de visualiser l'ouverture réalisée au centre de la structure, qui possède dans cet exemple une dimension de l'ordre de 50 nm, largeur minimale réalisable par le FIB dont nous disposons.

Afin de valider expérimentalement le fonctionnement de ce dispositif, nous l'avons ensuite

utilisé pour insoler une couche de résine photosensible (ici du PMMA dopé DR1). Cependant, pour faciliter l'observation des résultats de cette exposition, nous avons choisi, de même que dans le chapitre précédent, de positionner ce polymère directement sur la structure et nous avons donc effectué son dépôt par spin-coating, à une vitesse de 4000 tours/min.

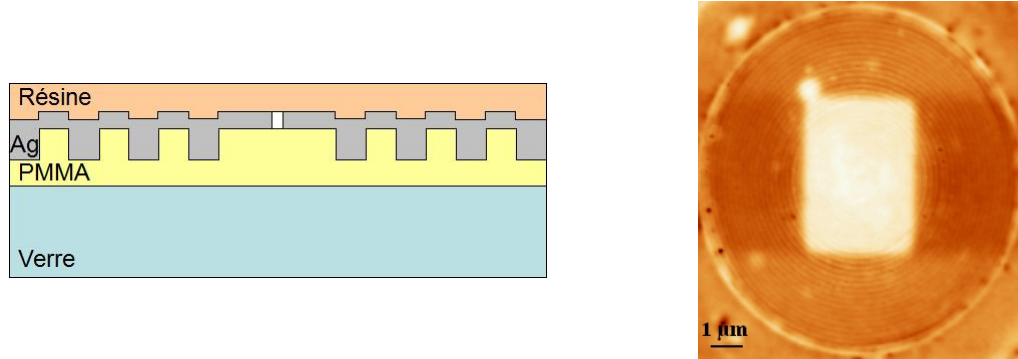


FIG. 3.7: **Etape 4 : dépôt de PMMA dopé DR1 sur le dispositif.** A gauche : schéma en coupe de la structure. A droite : topographie AFM de la surface de l'échantillon après le dépôt.

Nous avons alors obtenu la topographie présentée figure 3.7, qui possède plusieurs particularités. Cette image AFM met tout d'abord en évidence la formation d'un gonflement rectangulaire au centre de la structure, dont la hauteur peut atteindre plusieurs dizaines de nanomètres. Ce phénomène résulte vraisemblablement de la perforation FIB du film métallique d'argent. En effet, le système utilisé lors de ce processus comporte d'une part un faisceau d'ions focalisé, mais d'autre part un faisceau d'électrons aligné sur ce premier faisceau et dont le but est de permettre le positionnement sur l'échantillon par le biais d'une imagerie MEB. La structure étant réalisée sur un substrat de verre recouvert de PMMA, le gonflement obtenu serait ainsi une conséquence de l'exposition de cette couche polymère par le faisceau d'électrons et correspondrait à la fenêtre (rectangulaire) d'observation au MEB de l'échantillon. Enfin, cette image AFM indique également la présence de quelques granulosités supplémentaires en surface, particules résiduelles qui peuvent être due à l'inhomogénéité de la couche de résine.

Nous avons donné ici les différentes étapes technologiques que nous avons suivies afin de fabriquer la nanosource décrite de manière théorique au début de ce chapitre. Nous allons maintenant présenter les résultats que nous avons obtenus suite à l'illumination de ce système et donc à l'insolation de la couche de résine photosensible qui le recouvre.

### 3.2.2.2 Résultats d'insolation

Nous avons vu dans la partie théorique de ce chapitre que l'illumination de la nanosource dans le cadre d'une géométrie à deux dimensions s'effectuait avec une polarisation incidente perpendiculaire à l'axe de la fente sub-longueur d'onde générant le spot lumineux de sortie. La structure réalisée expérimentalement étant une symétrie de révolution de cette géométrie théorique, l'illumination optimale pour ce dispositif consisterait donc à l'éclairer par une polarisation radiale. Cependant, de même que dans le cas de l'exposition des réseaux circulaires au chapitre précédent, nous avons ici remplacé cette illumination par deux expositions successives de dose indentique et de polarisations perpendiculaires. Nous avons ainsi utilisé le même montage expé-

rimental d'illumination que celui décrit sur la figure 2.17 et nous avons effectué deux expositions successives à des doses de  $100 \text{ mW/cm}^2$  pendant 90 minutes. La figure 3.8 présente alors les résultats obtenus.

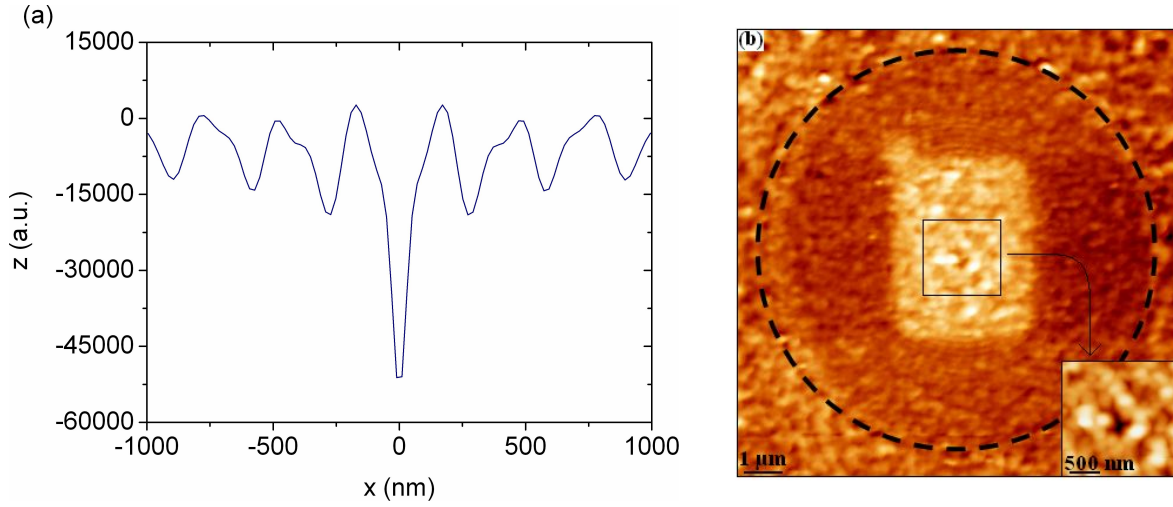


FIG. 3.8: Résultats théoriques et expérimentaux de l'insolation d'une couche de PMMA dopé DR1 par la nanosource à miroirs de Bragg. A gauche : profil théorique attendu à la surface de la couche de résine d'après le calcul du champ électromagnétique dans celle-ci effectué par la méthode des éléments finis sur la nanosource en deux dimensions. A droite : image AFM de la structure après exposition. Les pointillés délimitent l'étendue latérale des miroirs de Bragg. Un zoom du centre du système est également présenté dans l'encart à droite.

L'image de droite montre tout d'abord la topographie mesurée par AFM en surface de l'échantillon après exposition. Même si le gonflement de la couche de PMMA reste toujours visible, le détail du centre de la structure (encart à droite) laisse apparaître un trou d'une largeur environ 250 nm situé à l'aplomb de l'ouverture sub-longueur d'onde effectuée au FIB. Pour comparaison, l'image de gauche de la figure 3.8 donne alors le profil théorique attendu. Il s'agit ici de la réponse optique du PMMA dopé DR1 calculée selon l'équation (2.21) à partir des composantes du champ électromagnétique obtenues en surface de la couche de résine grâce au calcul de la structure en deux dimensions par la méthode des éléments finis. Ce profil théorique confirme effectivement la présence du trou observé expérimentalement et valide donc le fonctionnement de cette première géométrie de nanosource. Néanmoins, cette validation reste au stade qualitatif, notamment en raison de la forte rugosité de la surface du PMMA dopé DR1 après exposition et des approximations effectuées lors du dimensionnement de la structure en trois dimensions.

Dans cette partie, nous avons détaillé théoriquement et démontré expérimentalement le fonctionnement d'un dispositif générant un point chaud intense et localisé dont les pertes sont réduites. Cette première étude montre cependant que ce système pourrait encore être optimisé. En effet, l'utilisation de miroirs de Bragg limite par exemple la compacité de la source effectuée. De même, le rendement de celle-ci pourrait encore être augmenté, en particulier en collectant le champ incident de manière plus efficace. C'est ce que nous allons chercher à améliorer dans la suite de ce chapitre.

### 3.3 Vers une nanosource compacte et efficace

Le but de cette nouvelle étude est d'augmenter les performances de la nanosource réalisée précédemment en optimisant la cavité métallique introduite au voisinage de la fente sub-longueur d'onde. Le principe que nous avons suivi et que nous allons détailler dans la suite consiste ainsi à exploiter au maximum le champ incident sur cette structure de manière à améliorer sa transmission et par conséquent son efficacité.

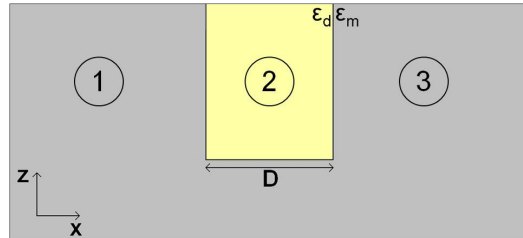
#### 3.3.1 Optimisation de la cavité

Nous avons donc apporté plusieurs modifications à cette nanosource. La première a été de remplacer la cavité à miroirs de Bragg plasmoniques constituée d'une alternance de couches de métal et de diélectrique par une cavité comportant une seule couche épaisse d'argent. La seconde a ensuite consisté à ajouter un réseau métallique en surface de cette structure, l'ensemble formant alors une nanosource compacte et efficace.

##### 3.3.1.1 Excitation de modes propres

La substitution des miroirs de Bragg plasmoniques de la cavité précédente par une épaisse couche de métal possède un double avantage. En effet, elle permet tout d'abord de réduire la complexité de cette structure tout en conservant sa fonctionnalité, c'est-à-dire la réflexion et le confinement des plasmons générés par la fente sub-longueur d'onde. Des calculs que nous avons effectués par la méthode d'Abelès [46] sur des couches métalliques d'argent éclairées à 532 nm indiquent ainsi que ces couches possèdent une réflectivité de plus de 97 pourcents pour des épaisseurs de métal supérieures à 70 nm. De plus, le second avantage majeur de ce type de cavité est qu'elle supporte des modes propres. L'excitation de ceux-ci par le biais d'une onde lumineuse incidente peut donc conduire, comme nous allons le voir, à concentrer le champ incident à l'intérieur de celle-ci et peut ainsi renforcer le flux lumineux susceptible d'être transmis à travers l'ouverture sub-longueur d'onde. Afin d'exploiter cette propriété et augmenter le rendement de notre dispositif, nous avons donc cherché à déterminer ces modes propres. Nous allons détailler ce calcul, la géométrie et les notations que nous avons utilisées étant précisées figure 3.9.

FIG. 3.9: **Schéma et notations de la cavité métallique bidimensionnelle.** Cette structure délimite trois domaines distincts : le centre de la cavité (milieu 2) et les deux parois métalliques (milieux 1 et 3).



Considérons une cavité bidimensionnelle constituée de deux parois métalliques semi-infinies de permittivité  $\varepsilon_m$  entourant une couche diélectrique de permittivité  $\varepsilon_d$  d'épaisseur  $D$  et éclairée en polarisation TM par une onde lumineuse incidente de longueur d'onde  $\lambda$ . Dans le cas d'ondes planes, le champ magnétique relatif à chacun des milieux schématisés figure 3.9 peut alors s'écrire

sous la forme :

$$\begin{aligned} H_y^{(1)}(x, z) &= [A_1 e^{j\beta x} + B_1 e^{-j\beta x}] [C_1 e^{jk_z z} + D_1 e^{-jk_z z}] \\ H_y^{(2)}(x, z) &= [A_2 e^{j\alpha x} + B_2 e^{-j\alpha x}] [C_2 e^{jk_z z} + D_2 e^{-jk_z z}] \\ H_y^{(3)}(x, z) &= [A_3 e^{j\beta x} + B_3 e^{-j\beta x}] [C_3 e^{jk_z z} + D_3 e^{-jk_z z}] \end{aligned}$$

où  $\alpha = \sqrt{k_0^2 \varepsilon_d - k_z^2}$  et  $\beta = \sqrt{k_0^2 \varepsilon_m - k_z^2}$  sont les composantes selon  $x$  des vecteurs d'onde des modes supportés par la cavité respectivement dans le milieu 2 et dans les milieux 1 et 3, où les  $A_i$ ,  $B_i$ ,  $C_i$  et  $D_i$  sont des constantes et où  $k_0 = 2\pi/\lambda$ .

Or, au niveau des parois de la cavité, les composantes tangentielles du champ électromagnétique sont continues. En choisissant l'origine de l'axe  $x$  au centre de la cavité, on a ainsi :

$$\begin{aligned} H_y^{(1)}(-D/2, z) &= H_y^{(2)}(-D/2, z) \quad \forall z \\ H_y^{(2)}(D/2, z) &= H_y^{(3)}(D/2, z) \quad \forall z \end{aligned}$$

et

$$\begin{aligned} E_z^{(1)}(-D/2, z) = E_z^{(2)}(-D/2, z) &\implies \frac{1}{\varepsilon_m} \frac{\partial H_y^{(1)}}{\partial x}(-D/2, z) = \frac{1}{\varepsilon_d} \frac{\partial H_y^{(2)}}{\partial x}(-D/2, z) \quad \forall z \\ E_z^{(2)}(D/2, z) = E_z^{(3)}(D/2, z) &\implies \frac{1}{\varepsilon_d} \frac{\partial H_y^{(2)}}{\partial x}(D/2, z) = \frac{1}{\varepsilon_m} \frac{\partial H_y^{(3)}}{\partial x}(D/2, z) \quad \forall z \end{aligned}$$

On obtient donc quatre équations dont les inconnues sont les constantes  $A_i$ ,  $B_i$ ,  $C_i$  et  $D_i$  :

$$\begin{cases} A_1 e^{-j\beta D/2} + B_1 e^{j\beta D/2} = A_2 e^{-j\alpha D/2} + B_2 e^{j\alpha D/2} \\ A_2 e^{j\alpha D/2} + B_2 e^{-j\alpha D/2} = A_3 e^{j\beta D/2} + B_3 e^{-j\beta D/2} \\ A_1 \frac{\beta}{\varepsilon_m} e^{-j\beta D/2} - B_1 \frac{\beta}{\varepsilon_m} e^{j\beta D/2} = A_2 \frac{\alpha}{\varepsilon_d} e^{-j\alpha D/2} - B_2 \frac{\alpha}{\varepsilon_d} e^{j\alpha D/2} \\ A_2 \frac{\alpha}{\varepsilon_d} e^{j\alpha D/2} - B_2 \frac{\alpha}{\varepsilon_d} e^{-j\alpha D/2} = A_3 \frac{\beta}{\varepsilon_m} e^{j\beta D/2} - B_3 \frac{\beta}{\varepsilon_m} e^{-j\beta D/2} \end{cases}$$

De plus, les parois de la cavité étant métalliques, les ondes pénétrant dans les milieux 1 et 3 sont atténuées et s'annulent quand  $x$  tend vers l'infini. Par conséquent  $A_1 = B_3 = 0$ . Le système d'équations précédent se simplifie alors selon :

$$\begin{cases} B_1 e^{j\beta D/2} - A_2 e^{-j\alpha D/2} - B_2 e^{j\alpha D/2} = 0 \\ A_2 e^{j\alpha D/2} + B_2 e^{-j\alpha D/2} - A_3 e^{j\beta D/2} = 0 \\ -B_1 \frac{\beta}{\varepsilon_m} e^{j\beta D/2} - A_2 \frac{\alpha}{\varepsilon_d} e^{-j\alpha D/2} + B_2 \frac{\alpha}{\varepsilon_d} e^{j\alpha D/2} = 0 \\ A_2 \frac{\alpha}{\varepsilon_d} e^{j\alpha D/2} - B_2 \frac{\alpha}{\varepsilon_d} e^{-j\alpha D/2} - A_3 \frac{\beta}{\varepsilon_m} e^{j\beta D/2} = 0 \end{cases}$$

système de quatre équations à quatre inconnues qui possède une solution non nulle si et seulement si son déterminant est nul. Cette condition conduit finalement à l'équation aux valeurs propres des modes supportés par cette cavité :

$$\cos(\alpha D) - \frac{j}{2} \left( \frac{\alpha \varepsilon_m}{\beta \varepsilon_d} + \frac{\beta \varepsilon_d}{\alpha \varepsilon_m} \right) \sin(\alpha D) = 0 \quad (3.1)$$

Or, la résolution du système précédent dans les conditions particulières où  $A_2 = B_2$  et  $A_2 = -B_2$  montre aussi que cette équation peut encore se réécrire sous la forme de deux relations indépendantes :

$$\tan \alpha D/2 + j \frac{\beta \varepsilon_d}{\alpha \varepsilon_m} = 0 \quad \text{dans le cas où } A_2 = B_2 \quad (3.2)$$

et

$$\tan \alpha D/2 + j \frac{\alpha \varepsilon_m}{\beta \varepsilon_d} = 0 \quad \text{dans le cas où } A_2 = -B_2 \quad (3.3)$$

Cette dernière formulation met ainsi en évidence l'existence de deux types de modes pour la géométrie étudiée : des modes pairs, décrits par l'équation (3.2) et des modes impairs, décrits par l'équation (3.3). Ces équations montrent aussi que les caractéristiques de ces modes dépendent directement de la largeur  $D$  de la cavité ainsi que des permittivités diélectriques des matériaux qui la constituent. Nous avons finalement tracé figure 3.10 les solutions  $k_z$  de ces équations en fonction de la largeur de la cavité pour une structure en argent remplie de PMMA et éclairée à 532 nm.

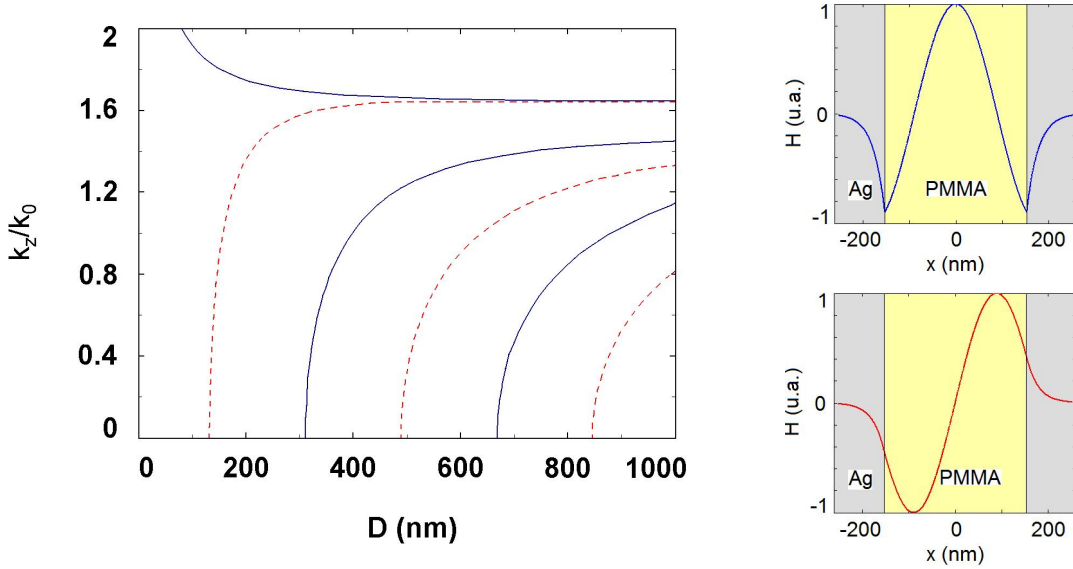


FIG. 3.10: **Solutions de l'équation aux valeurs propres (3.1).** Ces solutions sont constituées d'une alternance de modes pairs (en traits pleins bleus) et de modes impairs (en pointillés rouges). Les profils correspondants sont également donnés à titre d'illustration.

Ce graphique laisse effectivement apparaître une suite discrète de modes pairs (en traits pleins bleus) et de modes impairs (en pointillés rouges) qui se succèdent alternativement lorsque la largeur de la cavité augmente. L'étape suivante consiste alors à choisir la largeur  $D$  de cette cavité. Plusieurs considérations sont à prendre en compte.

En effet, comme nous l'avons précisé au début de ce paragraphe, le but de l'insertion d'une telle cavité autour de la fente sub-longueur d'onde de notre nanosource est d'exciter un mode propre de celle-ci de manière à ce que cette excitation renforce le flux lumineux transmis à travers la fente et améliore le rendement de ce dispositif. Cependant, ce phénomène nécessite un transfert efficace du champ confiné dans la cavité vers le mode propre plasmon de la fente



impliqué dans la transmission, c'est-à-dire un fort recouvrement de champ entre le mode propre de la cavité et celui de l'ouverture. Or, nous avons vu au début de ce chapitre que le mode propre plasmon de la fente était symétrique. Ce transfert ne pourra donc être efficace qu'à condition d'exciter un mode propre pair de la cavité.

De plus, de même que dans le cas de la nanosource à miroirs de Bragg pour plasmons, le premier rôle de cette cavité reste de réfléchir en phase les plasmons générés par l'illumination de la fente sub-longueur d'onde. La largeur de cette cavité doit par conséquent être de l'ordre d'un nombre entier de la moitié de la longueur d'onde des plasmons excités, c'est-à-dire, avec les matériaux et la longueur d'onde que nous avons choisis pour cette étude, être environ un multiple de 150 nm.

Enfin, cette structure sera d'autant plus efficace que le couplage entre le champ incident et le mode propre de cavité excité sera important. Or, cette condition correspond à l'excitation de ce mode à la coupure, c'est-à-dire avec un vecteur d'onde dont la composante  $k_z$  parallèle aux parois de la cavité est nulle. Dans ce cas, le mode est en effet excité à la limite entre le régime propagatif et évanescent, configuration qui conduit à une augmentation du temps de vie des photons dans la cavité et qui contribue ainsi à piéger et à confiner la lumière dans cette zone. L'excitation d'un mode propre de la cavité à la coupure permet également d'effectuer la transition entre le caractère propagatif du champ incident sur la structure et le caractère évanescent du mode propre plasmon supporté par la fente sub-longueur d'onde. Celle-ci augmente donc aussi l'efficacité du transfert de champ entre ces deux entités et ainsi l'intensité obtenue en sortie du système. La figure 3.11 illustre bien ces phénomènes.

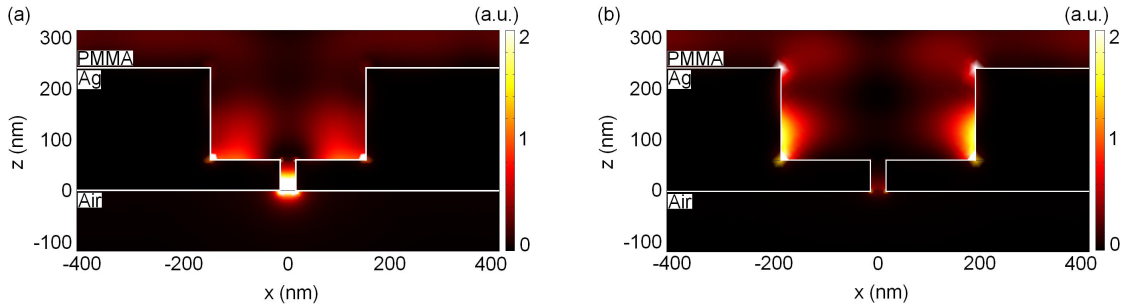


FIG. 3.11: Simulations de l'intensité du champ dans la cavité pour différentes largeurs  $D$  de celle-ci. A gauche :  $D = 310$  nm, excitation d'un mode propre pair de la cavité à la coupure. A droite :  $D = 380$  nm, excitation d'un mode propre pair de la cavité en dehors de la coupure. Les échelles de couleur sont identiques pour les deux simulations.

Il s'agit en effet de cartes de l'intensité du champ générée dans la cavité pour deux largeurs différentes de celle-ci, obtenues par la méthode des éléments finis en éclairant la structure par une onde plane à 532 nm polarisée perpendiculairement à l'axe de la fente. Ces simulations montrent clairement que la transmission à travers la fente sub-longueur d'onde n'est efficace que dans le cas où le mode de la cavité est excité à la coupure.

La combinaison de ces différentes remarques nous amène alors à choisir une largeur de cavité  $D = 310$  nm, largeur qui correspond d'une part à l'excitation à la coupure d'un mode propre pair de la cavité et qui vérifie d'autre part la condition de réflexion en phase des plasmons  $D \simeq p * 150$  nm, où  $p$  est un entier. Il s'agit également de la plus petite largeur de cavité permettant

l'excitation d'un mode propre pair, solution qui minimise donc aussi les pertes associées à la propagation des plasmons générés et réfléchis respectivement par la fente et les bords de la cavité.

Dans cette partie, nous avons effectué une première étape de modification de la source de base que nous avons testée au début de ce chapitre et nous avons ainsi montré que l'insertion d'une cavité entièrement métallique au voisinage de la fente sub-longueur d'onde permettait, grâce à l'excitation d'un de ses modes propres, de concentrer le champ incident au voisinage de celle-ci. Nous allons maintenant détailler une seconde étape de cette optimisation dont le but est d'augmenter la section efficace de la nanosource réalisée.

### 3.3.1.2 Ajout d'un réseau

Nous avons vu au paragraphe précédent que l'excitation d'un mode propre de la cavité permettait d'augmenter la portion de champ incident utile à la formation du spot lumineux obtenu en sortie de la nanosource. Cependant, dans cette configuration, le champ incident sur les bords de cette structure reste encore majoritairement réfléchi et ne contribue alors que très peu à la formation de ce spot. Afin d'améliorer le rendement du dispositif, nous avons donc cherché à augmenter la section efficace de cette cavité et nous avons inséré des réseaux métalliques au niveau de la surface supérieure de celle-ci. En effet, l'objectif de ces réseaux consiste ici à convertir la lumière incidente sur cette zone en plasmons de surface, la propagation puis le couplage de ces ondes le long de la structure permettant ensuite d'introduire du champ supplémentaire dans la cavité et augmentant ainsi une nouvelle fois la quantité de champ susceptible de se coupler au mode plasmon de la fente sub-longueur d'onde générant le spot lumineux de sortie.

Nous avons montré dans les chapitres précédents que la condition d'excitation de plasmons de surface par un réseau métallique était donnée en incidence normale par l'égalité  $a = \lambda_{sp}$  où  $a$  est le pas du réseau et  $\lambda_{sp}$  est la longueur d'onde des plasmons excités. Or, dans le cas de l'excitation de plasmons à la surface supérieure de la cavité, la couche métallique supportant ces ondes est composée à la fois des parois de la cavité et du film métallique dans lequel est percée la fente sub-longueur d'onde. Par conséquent, cette couche est suffisamment épaisse pour que l'on puisse considérer l'interface métal/diélectrique mise en jeu comme séparant deux milieux semi-infinis. Nous avons alors calculé la longueur d'onde de ces plasmons  $\lambda_{sp}$  directement par la relation de dispersion (1.4) :

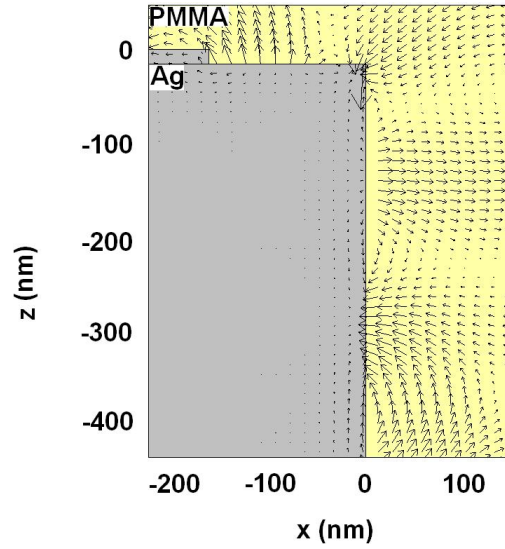
$$k_{sp} = \frac{2\pi}{\lambda_{sp}} = \frac{2\pi}{\lambda} \sqrt{\frac{\varepsilon_d \varepsilon_m}{\varepsilon_d + \varepsilon_m}}$$

où  $\varepsilon_d$  et  $\varepsilon_m$  sont respectivement les permittivités diélectriques du diélectrique (ici le PMMA) et du métal (ici l'argent) à la longueur d'onde d'illumination  $\lambda$ , c'est-à-dire 532 nm. Ce calcul conduit finalement à  $a = \lambda_{sp} = 320$  nm.

Les simulations que nous avons réalisées montrent ensuite que cette excitation de plasmons permet effectivement d'introduire du champ supplémentaire dans la cavité. La figure 3.12 présente par exemple une carte du vecteur champ électrique calculée par la méthode des éléments finis pour une cavité métallique d'argent bidimensionnelle de largeur 310 nm et de hauteur 500 nm éclairée en incidence normale par une onde plane de longueur d'onde 532 nm et surmontée

d'un réseau de pas 320 nm et de profondeur 15 nm. La hauteur de la cavité a ici été volontairement exagérée par rapport aux dimensions finales de la nanosource afin de permettre une meilleure visualisation des phénomènes mis en jeu.

FIG. 3.12: Carte du vecteur champ électrique au voisinage du coin supérieur gauche d'une cavité métallique bidimensionnelle surmontée d'un réseau. La rotation du champ électrique le long des surfaces métalliques met en évidence la propagation de plasmons de part et d'autre du coin métallique et montre le passage des plasmons excités en surface par les réseaux vers les modes de cavité.



Cette carte montre une rotation du vecteur champ électrique le long des surfaces métalliques, phénomène qui est caractéristique de la propagation des plasmons de surface. Cette simulation met ainsi en évidence la présence de ces ondes d'une part au niveau de la surface de la cavité (excitation par le biais des réseaux métalliques), mais d'autre part le long des parois de celle-ci, dernier point qui démontre le passage des plasmons excités en surface vers la cavité et par conséquent l'introduction de champ supplémentaire dans cette structure. De plus, un calcul RCWA que nous avons effectué sur l'empilement argent (épaisseur 500 nm) / PMMA (épaisseur 310 nm) / argent (épaisseur 500 nm) correspondant à la coupe selon  $x$  de la cavité métallique indique également que ce phénomène serait en particulier supporté par un mode propre plasmon de la cavité, d'indice effectif  $n_{\text{eff}} = 1.69 + 0.01i$  et symétrique. Ce mode possède donc aussi un fort recouvrement de champ avec le mode propre plasmon de la fente sub-longueur d'onde, propriété qui favorise le transfert de champ entre ces deux entités et contribuerait à augmenter la transmission du système.

Nous venons de voir que l'ajout de réseaux métalliques en surface de la cavité entourant la fente sub-longueur d'onde permet d'exciter des plasmons dont la propagation introduit un flux supplémentaire dans la structure. Cependant, afin d'optimiser au maximum les performances de ce dispositif, plusieurs ajustements doivent encore être effectués.

### 3.3.1.3 Ajustement des dimensions

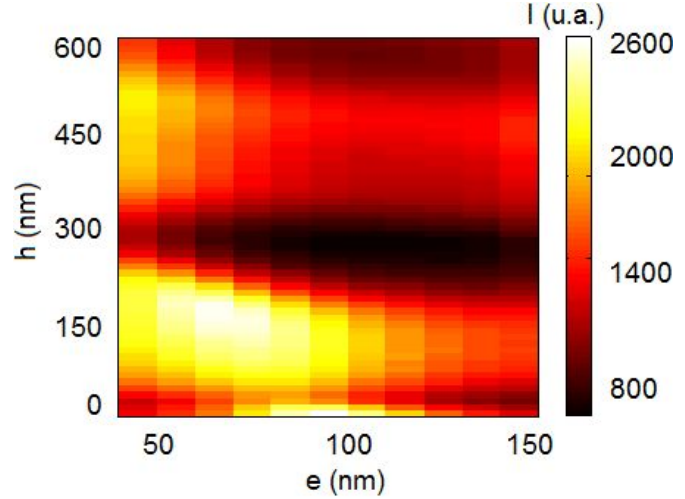
D'après les résultats que nous avons donné dans les paragraphes précédents, la nanosource étudiée se compose en effet d'une fente sub-longueur d'onde percée dans un film d'argent, surmontée d'une cavité de largeur  $D = 310$  nm et à la surface de laquelle sont positionnés des réseaux de pas  $a = 320$  nm. Plusieurs dimensions de cette nouvelle géométrie restent donc à préciser.

Concernant par exemple la profondeur des réseaux, l'objectif de ceux-ci étant uniquement

la génération de plasmons de surface, cette dimension doit rester relativement faible de manière à limiter la diffraction et la concentration de champ dans cette zone. Nous avons ainsi choisi une hauteur de 15 nm pour ces structures. De même, la diffraction du champ incident sur les coins supérieurs de la cavité peut également générer des plasmons. L'ajout de ces réseaux en surface ne sera donc véritablement efficace que si les plasmons excités par ces structures sont en phase avec ceux générés par les coins, c'est-à-dire que le bord de ces réseaux est à une distance  $d$  du bord de la cavité égale à un nombre entier de la moitié de la longueur d'onde  $\lambda_{sp}$  de ces plasmons. Afin de limiter les pertes par propagation, nous avons par conséquent positionné ces structures à  $d = \lambda_{sp}/2 = 160$  nm des parois de la cavité.

Enfin, la hauteur  $h$  de la cavité ainsi que l'épaisseur  $e$  du film métallique perforé doivent également être optimisés. Afin de déterminer ces dimensions, nous avons calculé l'intensité obtenue en sortie de la fente sub-longueur d'onde pour différentes valeurs de ces paramètres. Le résultat est présenté figure 3.13.

FIG. 3.13: Cartographie de l'intensité du champ obtenue en sortie de la nanosource en fonction de la hauteur  $h$  de la cavité et de l'épaisseur  $e$  du film d'argent perforé. L'optimum est obtenu pour une cavité de hauteur 180 nm et un film métallique de 60 nm d'épaisseur.



Cette cartographie comporte plusieurs caractéristiques. Pour une épaisseur d'argent perforée  $e$  constante, on remarque tout d'abord une succession périodique de maxima de champ lorsque la profondeur  $h$  de la cavité augmente. La période correspondante, de l'ordre de 320 nm (c'est-à-dire environ égale à la longueur d'onde des plasmons se propageant le long des parois de la cavité) indiquerait que l'origine de cette périodicité est la formation d'interférences le long des parois, entre les plasmons provenant des réseaux métalliques surmontant la cavité d'une part et leur réflexion par le film métallique perforé situé au fond de celle-ci d'autre part. L'intervention des plasmons dans ces interférences est également confirmée par l'atténuation du maximum de champ observée lorsque la hauteur de la cavité  $h$  augmente. L'optimum est ensuite obtenu pour une cavité de hauteur 180 nm, soit environ  $\lambda_{sp}/2$ , condition relative à l'apparition d'interférences constructives qui a déjà été utilisée dans ce chapitre pour déterminer en particulier la largeur de la cavité. Enfin, concernant l'épaisseur  $e$  du film métallique perforé, le maximum de champ en sortie est atteint pour une épaisseur de 60 nm. Nous avons donc choisi ces deux valeurs dans la suite.

Dans cette partie, nous avons détaillé les différentes modifications que nous avons apportées à la nanosource à miroirs de Bragg afin d'exploiter au maximum le champ incident sur cette

structure et augmenter son rendement. Dans la fin de ce chapitre, nous allons donc revenir sur les performances associées à cette nouvelle source et nous insisterons en particulier sur l'influence de la cavité que nous avons introduite sur l'intensité du spot lumineux obtenu.

### 3.3.2 Structure finale

Nous allons dans un premier temps résumer les différents phénomènes que nous avons décrit dans les paragraphes précédents et qui entrent en jeu dans le fonctionnement de cette nanosource. Nous donnerons ensuite quelques unes de ses caractéristiques.

#### 3.3.2.1 Fonctionnement

La figure 3.14 récapitule ainsi les dimensions des différents éléments constituant la source dans le cas de l'illumination de celle-ci par une onde plane à 532 nm, polarisée perpendiculairement à l'axe de la fente sub-longueur d'onde, en prenant l'argent pour métal et un substrat (partie située au dessus du schéma) composé de verre recouvert d'une épaisse couche de PMMA. Le milieu de sortie (partie située au dessous du schéma) est ici de l'air.

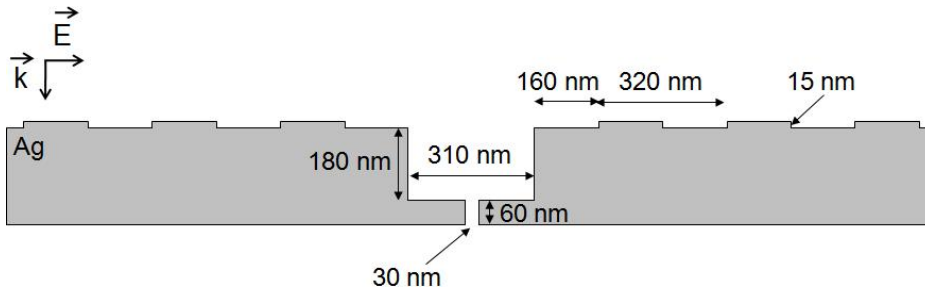


FIG. 3.14: **Récapitulatif de la géométrie de la nanosource.** Il s'agit d'un schéma en coupe de la structure.

Lors de l'illumination de ce dispositif, nous avons alors montré que plusieurs phénomènes intervenaient simultanément. Au niveau de la surface supérieure de la cavité, l'éclairage des réseaux conduit tout d'abord à l'excitation de plasmons de surface qui se propagent horizontalement jusqu'aux coins supérieurs de celle-ci. Ces plasmons se couplent ensuite aux différents modes de la cavité, modes qui sont également directement excités par le champ incident sur celle-ci. Nous avons vu qu'il s'agissait d'une part du mode propre plasmon supporté par les parois métalliques de cette structure et d'autre part du mode propre symétrique de celle-ci. Au fond de la cavité, ces différents modes se couplent enfin par recouvrement de champ au mode propre plasmon de la fente sub-longueur d'onde, transfert de champ qui conduit à la formation du spot lumineux en sortie du système. Ce processus est également renforcé par le couplage sur ce mode des plasmons générés par les bords de la fente et réfléchis par les parois de la cavité.

Dans ce paragraphe, nous avons brièvement rappelé le fonctionnement de notre structure. Nous allons maintenant donner le résultat de la combinaison de ces différents phénomènes physiques et détailler les propriétés de cette source et du spot lumineux qu'elle génère.

### 3.3.2.2 Caractéristiques

Les performances de cette nanosource sont résumées sur la figure 3.15. Il s'agit de simulations que nous avons effectuées en deux dimensions par la méthode des éléments finis sur les trois types de structures étudiées dans ce chapitre : la fente sub-longueur d'onde seule, la fente sub-longueur d'onde surmontée d'une cavité métallique et la structure complète comportant des réseaux d'excitation de plasmons en surface. Tous ces dispositifs reposent ici sur un substrat de verre recouvert de PMMA et sont éclairés en incidence normale par une onde plane à 532 nm polarisée perpendiculairement à l'axe de la fente.

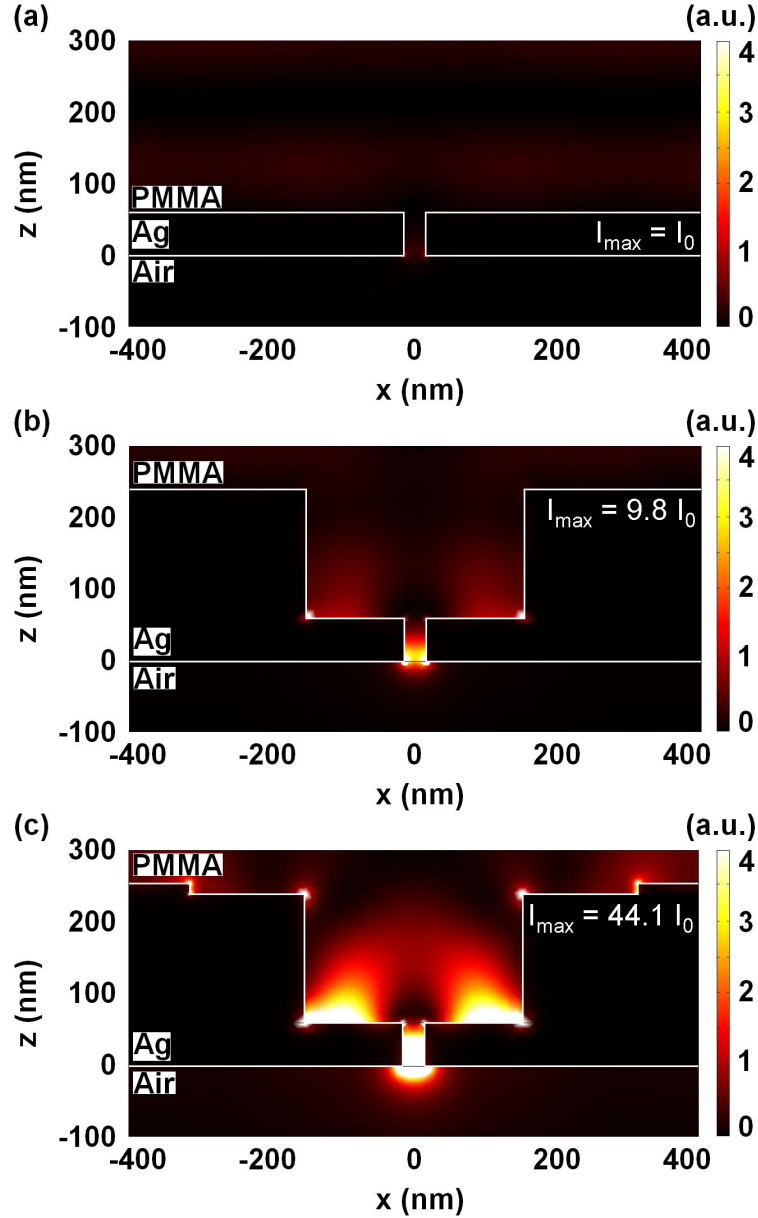


FIG. 3.15: **Caractéristiques de la nanosource.** Carte de l'intensité du champ dans les trois structures étudiées au cours de ce chapitre. En haut : fente sub-longueur d'onde seule. Au centre : fente sub-longueur d'onde surmontée d'une cavité métallique. En bas : structure complète incluant les réseaux d'excitation de plasmons en surface de la cavité. Les échelles de couleurs sont identiques pour chacune des structures.

Les cartes d'intensité du champ obtenues mettent particulièrement bien en évidence l'effica-

cité de la cavité métallique. En effet, celles-ci montrent que l'intensité du spot lumineux généré en sortie du dispositif est multipliée par près d'un facteur 10 entre la fente sub-longueur d'onde seule et la structure comportant une cavité et est de nouveau multipliée par plus d'un facteur 4 par l'introduction des réseaux.

Or, cette augmentation spectaculaire d'intensité joue également sur le rendement de la nanosource. Afin de quantifier cette amélioration, nous avons donc cherché à calculer ce rendement. Toutefois, ce paramètre reste difficile à évaluer dans le cas d'une illumination de type onde plane. Afin d'effectuer ce calcul, nous avons alors modifié l'éclairage de nos dispositifs et retracé ces cartes de champ pour une illumination d'extension finie (typiquement quelques centaines de nanomètres), que nous avons par simplicité choisie de forme gaussienne. En effet, la puissance totale incidente sur le système peut alors être facilement calculée analytiquement selon :

$$P_{\text{in}} = \int_{-\infty}^{+\infty} \vec{E} \wedge \vec{H} \cdot \vec{dn}$$

où  $\vec{E}$  et  $\vec{H}$  sont respectivement le champ électrique et magnétique incidents et  $\vec{dn}$  est le vecteur unitaire normal à la surface de la structure. Nous avons ensuite obtenu la puissance de sortie  $P_{\text{out}}$  de la source en effectuant numériquement cette même intégrale sur la frontière extérieure de la fente sub-longueur d'onde avec les champs résultant du calcul de la structure par la méthode des éléments finis. Nous avons finalement trouvé les rendements :

$$\eta = \frac{P_{\text{out}}}{P_{\text{in}}}$$

$$\eta = 4.7 \text{ pourcents pour la fente sub-longueur d'onde seule}$$

$$\eta = 15.1 \text{ pourcents pour la fente surmontée d'une cavité métallique}$$

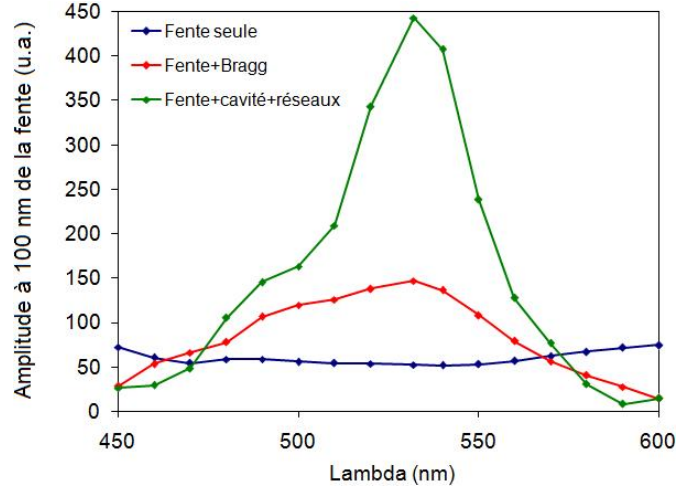
$$\eta = 29.9 \text{ pourcents pour la structure complète avec les réseaux}$$

Ces chiffres montrent une augmentation de plus d'un facteur 6 de l'efficacité de la source grâce à l'introduction de la cavité et des réseaux métalliques. De plus, le rendement maximal atteint ici les 30 pourcents, valeur qui constitue un très bon résultat pour un dispositif de type champ proche dont le rendement est fréquemment limité à quelques pourcents.

Afin de déterminer les caractéristiques du spot lumineux généré par cette source, nous avons ensuite extrait des cartes de champ précédentes une coupe de l'intensité présente à 10 nm de la sortie de la fente. De même que pour l'optimisation des dimensions de la nanosource à miroirs de Bragg, nous avons alors modélisé ce profil par une gaussienne et obtenu un diamètre de spot d'environ 60 nm pour un contraste de près de 90 pourcents, caractéristiques qui satisfont pleinement les objectifs de résolution fixés au début de ce chapitre. Ce spot reste cependant de type champ proche, puisque le faisceau généré s'atténue relativement vite : la mesure de la décroissance de celui-ci dans la couche d'air montre en effet une distance d'atténuation en  $1/e$  de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres.

Enfin, la figure 3.16 présente les caractéristiques spectrales de cette nanosource. Le graphe obtenu montre ainsi une résonance de la structure autour de la longueur d'onde d'utilisation de 532 nm, plus piquée que celle de la nanosource à miroirs de Bragg et dont la largeur à mi-hauteur est environ égale à 50 nm. Cette source est par conséquent fortement sélective en

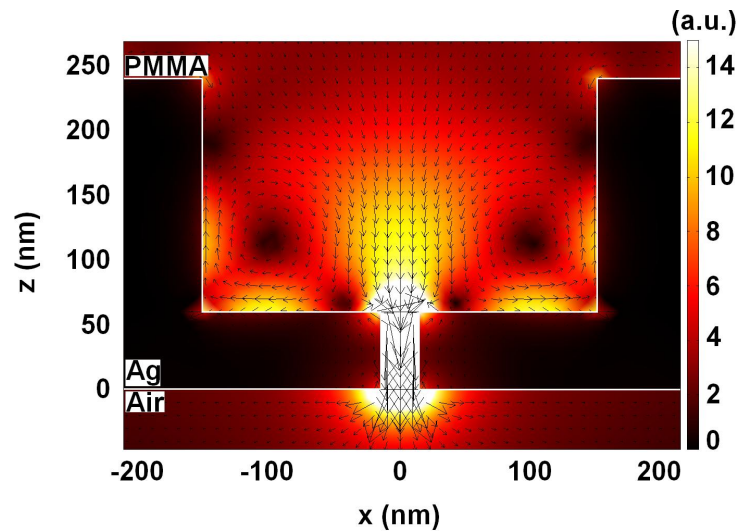
FIG. 3.16: **Réponse spectrale de la nanosource.** Les réponses associées à une fente seule ainsi qu'à la nanosource à miroirs de Bragg sont également données à titre de comparaison.



longueur d'onde, propriété qui n'est pas essentielle en lithographie mais qui pourra être très intéressante pour d'autres applications comme l'imagerie par exemple.

Dans cette partie, nous avons donné le fonctionnement et les caractéristiques de la nanosource dont nous avons détaillé la conception tout au long de ce chapitre. Les résultats que nous avons obtenus montrent que cette structure génère un spot lumineux intense et de très faibles dimensions et mettent notamment en évidence l'influence déterminante de l'introduction d'une cavité métallique autour d'une fente sub-longueur d'onde sur l'efficacité de transmission de ce dispositif. Cependant, un dernier phénomène mérite encore d'être mentionné concernant cette source, phénomène qui permet en particulier d'illustrer de manière qualitative le rôle de concentrateur de champ de cette cavité. La figure 3.17 montre en effet l'allure du flux de puissance (couleurs) ainsi que du vecteur de Poynting (flèches) au sein de ce système. Cette carte indique nettement la formation de vortex pour le flux de puissance, qui se dirigent des bords de la fente vers les parois de la cavité et reviennent vers le centre de la structure.

FIG. 3.17: **Carte du flux de puissance (couleurs) et du vecteur de Poynting (flèches) dans la cavité.** Le calcul est effectué par la méthode des éléments finis en éclairant la structure par une onde plane en incidence normale à 532 nm polarisée TM.



Or, si l'on considère l'équation de conservation de l'énergie  $e$ , on a :

$$\text{div} \left( \vec{E} \wedge \vec{H} \right) + \frac{\partial e}{\partial t} + \vec{j} \cdot \vec{E} = 0$$



ce qui donne, en absence de courant  $\vec{j}$  et de variation d'énergie dans le système :

$$\text{div} \left( \vec{E} \wedge \vec{H} \right) = 0 \quad (3.4)$$

De plus, en mécanique des fluides, la conservation de la masse s'écrit :

$$\text{div} (\rho \vec{v}) + \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0$$

où  $\rho$  est la masse volumique et  $v$  est la vitesse du fluide. Pour un fluide incompressible à masse volumique constante, on obtient donc :

$$\text{div} (\vec{v}) = 0 \quad (3.5)$$

La similitude des équations (3.4) et (3.5) peut alors conduire à faire l'analogie entre le vecteur de Poynting  $\vec{E} \wedge \vec{H}$  en électromagnétisme et la vitesse  $\vec{v}$  en mécanique des fluides. Ainsi, en appliquant cette analogie à la carte du flux de puissance précédente, les flèches représentant initialement la direction du vecteur de Poynting peuvent être vues comme des lignes de courant. On retrouve dans ce cas un phénomène de turbulence bien connu en mécanique des fluides, qui apparaît notamment aux changements de section d'une conduite lorsque le flux incident sur la seconde section est trop important pour que celui-ci la traverse directement. Le fluide est alors rabattu vers les parois de la première section avant de revenir vers le centre de l'écoulement. Cette analogie, bien que qualitative, laisserait donc penser que la cavité placée au voisinage de la fente sub-longueur d'onde concentre le flux lumineux avec une efficacité suffisamment importante pour que celui-ci ne puisse pas être transmis intégralement à travers l'ouverture sub-longueur d'onde et soit alors détourné vers les parois métalliques latérales.

### 3.4 Conclusions

Dans la continuité du chapitre précédent au cours duquel nous avons démontré les performances de la lithographie par interférence de plasmons pour l'impression de motifs complexes à bas coût, l'objectif de ce chapitre consistait à évaluer les possibilités de la lithographie assistée par plasmons de surface en terme de résolution. Nous avons alors développé une nanosource optique en champ proche, dont le principe de base, visant à insérer une cavité métallique au voisinage d'une ouverture sub-longueur d'onde afin de limiter les pertes de ce système, a été validé expérimentalement. Nous avons ensuite montré que l'optimisation de cette cavité conduisait à la génération d'un spot intense et localisé avec un rendement pouvant atteindre les 30 pourcents.

L'avantage de cette source est que le diamètre du spot lumineux obtenu est fixé par la taille de l'ouverture sub-longueur d'onde réalisée. La résolution de ce dispositif est donc uniquement limitée par les performances des outils technologiques utilisés pour sa fabrication. De plus, cette nanosource est relativement compacte puisque la largeur maximale de la structure que nous avons développée est de l'ordre de quelques microns. Les caractéristiques de cette source ouvrent ainsi de larges perspectives quant à son utilisation en lithographie. Elle pourrait ainsi être employée dans le cadre d'une technique alternative bas coût haute résolution pour effectuer des lithographies point par point ou également être insérée sous forme de matrice pour imprimer plusieurs motifs en parallèle.

L'inconvénient majeur de cette structure qui limite encore ses applications dans le domaine industriel de la microélectronique reste cependant le champ proche et la nécessité d'un contact intime entre la face de sortie de la source et la couche de résine à insoler. De récents travaux [47] ont toutefois proposé un système qui permettrait de refocaliser le spot lumineux généré. L'insertion de réseaux diélectriques de pas variable en sortie du dispositif conduirait en effet à une délocalisation de ce spot à une distance de l'ordre du micron de la sortie de la fente. Même si nous n'avons pas pu dans le cadre de cette thèse évaluer les performances de ce type de système, notamment en terme de résolution, celui-ci semble prometteur et pourrait dans notre cas considérablement réduire les contraintes liées au caractère localisé de notre source.

Enfin, les applications du dispositif que nous avons décrit dans ce chapitre ne se limitent pas uniquement au domaine de la lithographie. Nous verrons dans la suite qu'il pourrait par exemple être inséré dans des têtes de lecture/écriture en stockage optique. D'autres applications sont également possibles, comme l'imagerie, que nous avons déjà mentionnée, ou la microscopie, les pinces optiques... Cette source est donc relativement universelle et, de même que la lithographie assistée par plasmons de surface, pourrait être adaptée à de nombreuses configurations. C'est ce que nous allons détailler au chapitre suivant.



## Chapitre 4

# Applications et perspectives de la lithographie plasmonique

Dans les chapitres précédents, nous avons vu au travers de deux exemples que la lithographie assistée par plasmons de surface était une méthode de lithographie alternative bas coût intéressante pour effectuer des motifs complexes ou à haute résolution. L'objectif de ce chapitre est de dresser de manière plus générale un aperçu des différentes applications et perspectives de cette technique. Ainsi, nous verrons en particulier que la nanosource développée précédemment pourrait être adaptée pour imprimer des motifs arbitraires ou pourrait également fonctionner à d'autres longueurs d'onde. Enfin, nous élargirons cette étude au-delà du domaine de la lithographie et nous insisterons sur les autres utilisations possibles de ce dispositif.

### 4.1 Vers la réalisation de motifs arbitraires : exemple de l'impression de motifs en parallèle

La nanosource que nous avons détaillée au chapitre précédent visait à réaliser un point chaud intense et localisé unique. Cependant, cette structure pourrait aussi être adaptée afin de générer des motifs plus complexes. En effet, nous allons voir dans cette partie que l'allure du spot lumineux obtenu dépend directement de la forme de l'ouverture sub-longueur d'onde réalisée. De même, nous montrerons que l'intensité de ce spot peut être optimisée en fonction du profil de la cavité métallique introduite au voisinage de cette ouverture. Nous allons ici traiter le cas particulier de l'impression de motifs en parallèle, la démarche que nous avons suivie pouvant ensuite être adaptée au cas général pour effectuer des motifs arbitraires.

#### 4.1.1 Réalisation d'une ouverture adaptée : une fente

La première étape consiste alors à modifier l'ouverture effectuée au centre de la structure de manière à générer les motifs lumineux de forme souhaitée. Dans cet exemple, nous avons choisi de nous intéresser à la réalisation de motifs en parallèle. Il s'agit donc ici d'imprimer simultanément plusieurs spots lumineux localisés de formes identiques. Nous allons voir dans ce paragraphe que ce type de motifs peut en particulier être obtenu par le biais de l'éclairage d'une

fente sub-longueur d'onde de longueur adaptée.

Considérons une fente de 50 nm de largeur percée dans un film métallique d'argent ( $n = 0.05 + 3.43i$ ) de 50 nm d'épaisseur et déposé sur un substrat de verre ( $n = 1.48$ ) recouvert de 150 nm de PMMA ( $n = 1.49$ ), l'ensemble étant placé dans l'air. L'illumination de cette structure par une onde plane de longueur d'onde 532 nm polarisée perpendiculairement à l'axe de la fente donne alors les résultats présentés figure 4.1. Il s'agit ici du profil de l'intensité du champ électrique générée à 10 nm de la sortie de la fente pour différentes longueurs de celle-ci, profil obtenu à partir du calcul de cette structure en trois dimensions par la méthode des éléments finis.

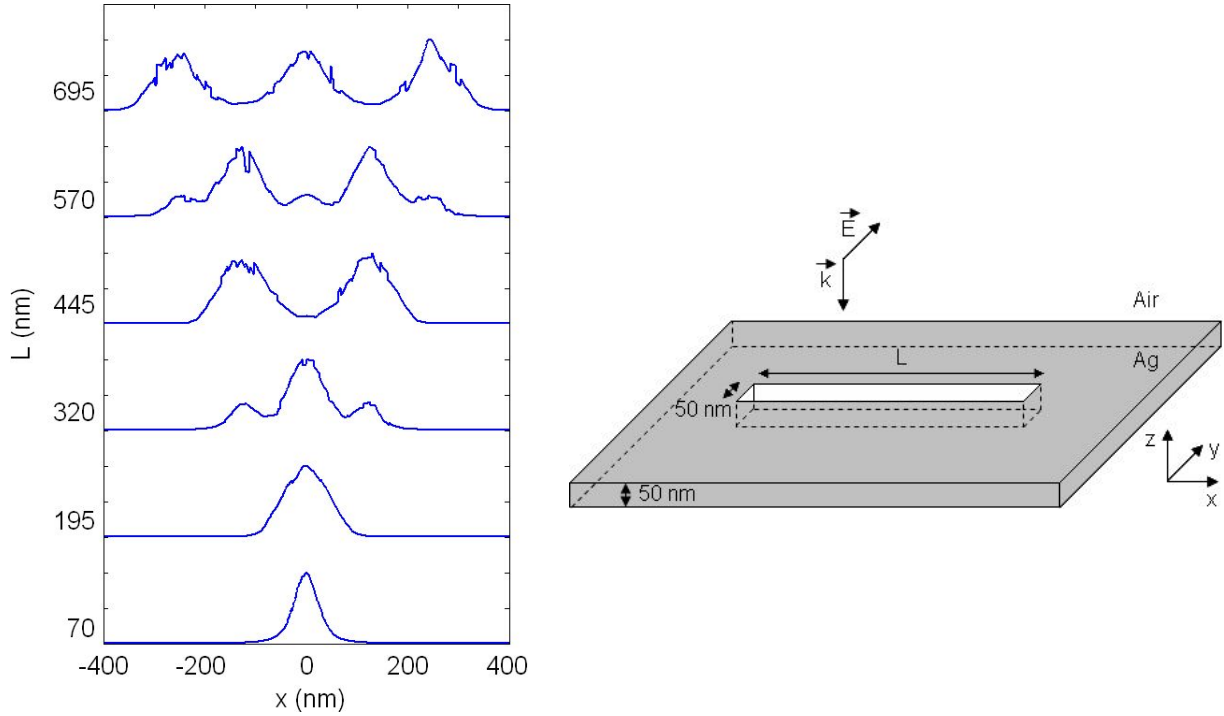


FIG. 4.1: **Profils d'intensité en sortie d'une fente sub-longueur d'onde pour différentes longueurs de celle-ci.** Un schéma de la structure est également présenté. Le bruit observé sur certains profils provient de la discrétisation du maillage utilisé lors de la simulation par éléments finis, un peu faible dans le cas des grandes géométries (contraintes en terme de temps de calcul).

Ce graphe met effectivement en évidence l'apparition de plusieurs maxima de champ au fur et à mesure que la longueur de la fente augmente, espacés alternativement d'environ 120 nm ou 240 nm. Ce premier résultat démontre donc que l'illumination d'une fente sub-longueur d'onde génère plusieurs spots lumineux dont le nombre et l'écartement dépend directement de la longueur de celle-ci, spots qui pourraient ainsi être utilisés afin d'imprimer plusieurs motifs en parallèle.

Les différents lobes de champ observés s'expliquent ensuite assez bien par l'excitation de modes propres de la structure. Prenons l'exemple de la fente de 570 nm de longueur, cas pour lequel le profil d'intensité en sortie de celle-ci présente cinq maxima. Nous avons en effet réalisé une recherche des modes propres supportés par cette fente par le biais d'un solveur de modes, basé sur le calcul en trois dimensions du champ électromagnétique dans la structure par la méthode des différences finies dans le domaine temporel (FDTD). Or, celle-ci montre en par-

#### 4.1. Vers la réalisation de motifs arbitraires : exemple de l'impression de motifs en parallèle

ticulier l'existence de deux modes, l'un pair présentant deux maxima de champ, l'autre impair comportant cinq maxima de champ et dont les cartes d'intensité sont présentées en haut de la figure 4.2. Afin de permettre une meilleure comparaison des profils obtenus, l'image du bas de la figure 4.2 montre également la carte d'intensité du champ en sortie de la fente lors de son illumination par une onde plane à 532 nm polarisée selon  $y$  et calculée en trois dimensions par la méthode des éléments finis (carte dont est extrait le profil de la figure 4.1). La superposition de ces deux modes propres concorde alors relativement bien avec l'allure du champ effectivement généré (2+3 maxima), résultat qui indiquerait donc que ceux-ci sont excités lors de l'illumination de la structure.

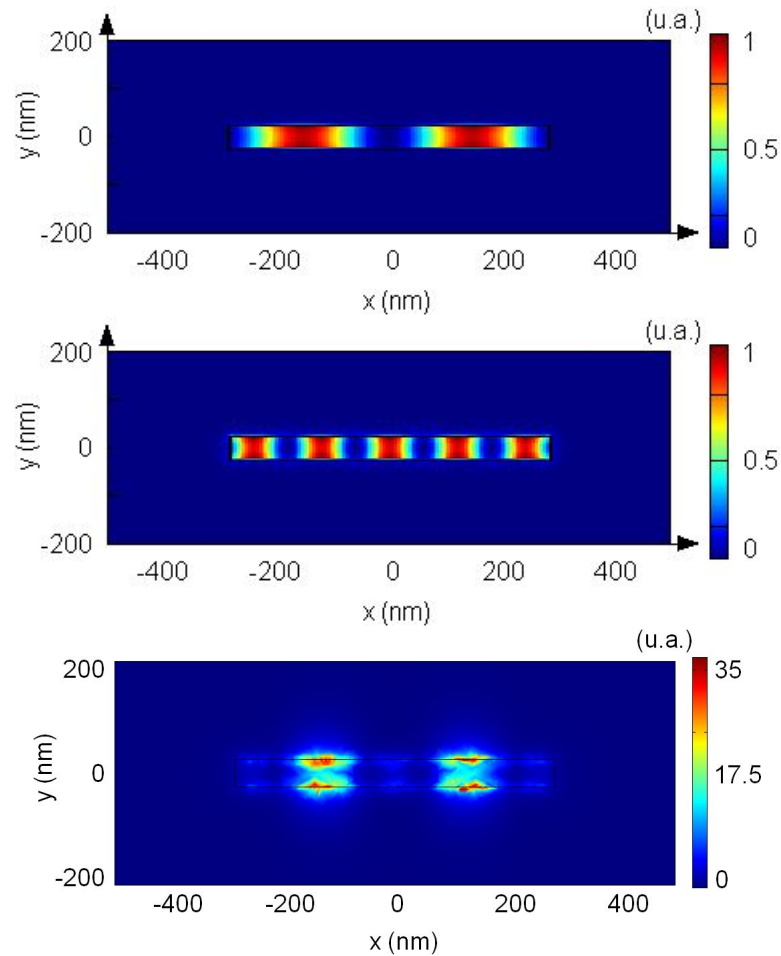


FIG. 4.2: **Cartes d'intensité de champ dans la fente sub-longueur d'onde.** En haut : intensités de deux modes propres de la fente obtenues par FDTD. En bas : intensité générée en sortie de la structure calculée par éléments finis. La fente a une longueur de 570 nm et une largeur de 50 nm.

En revanche, cette dernière carte de champ montre aussi que l'intensité des différents maxima obtenus dans cette configuration n'est pas homogène et doit être améliorée afin d'obtenir cinq spots lumineux de même intensité et ainsi permettre l'impression de cinq plots identiques lors de l'utilisation de cette structure pour insoler une couche de résine photosensible. Nous allons voir dans le paragraphe qui suit que cela peut être réalisé en entourant cette ouverture d'une cavité métallique selon le même principe que pour la nanosource décrite au chapitre précédent, puis en optimisant la forme de celle-ci.

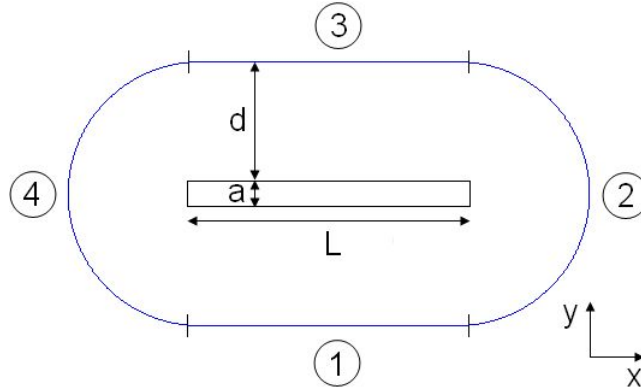
### 4.1.2 Réalisation d'une cavité adaptée

La seconde étape d'adaptation de la nanosource que nous avons décrite au chapitre précédent à l'impression de motifs en parallèle consiste donc à maximiser et à uniformiser l'intensité et le contraste des spots lumineux générés par la fente sub-longueur d'onde. Nous allons montrer ici que cette homogénéisation peut être obtenue grâce à l'insertion d'une cavité de profil adapté au voisinage de cette ouverture. La fente étudiée précédemment étant de forme rectangulaire, nous avons choisi comme forme initiale de cette cavité un ovale, profil qui conduit à une répartition homogène des parois métalliques autour de la fente. Nous avons ensuite cherché à modifier celui-ci afin d'améliorer les propriétés des spots générés. Dans les paragraphes qui suivent, nous allons donc tout d'abord donner le calcul que nous avons réalisé afin de déterminer les coordonnées de cette cavité ovale, puis nous détaillerons la démarche que nous avons effectuée afin de l'optimiser.

#### 4.1.2.1 Calcul du profil initial

La figure 4.3 présente une vue de dessus schématique de la géométrie, constituée de la fente sub-longueur d'onde rectangulaire (en noir) entourée de la cavité ovale (en bleu).

FIG. 4.3: **Schéma (vue de dessus) de la géométrie considérée.** Il s'agit d'une fente sub-longueur d'onde (en noir) entourée d'une cavité de profil ovale (en bleu). Les notations utilisées dans le calcul sont également précisées.



Comme indiqué sur le schéma, le profil de cette cavité peut alors se décomposer en quatre grandes parties : deux sections droites (1 et 3) et deux arcs de cercle (2 et 4). Avec les notations de la figure 4.3, les coordonnées  $(x, y)(t)$  des parois de cette cavité peuvent donc s'écrire :

$$\begin{aligned}
 x(t) &= \begin{cases} -\frac{1}{2}(L-a) + \frac{\Lambda}{2\pi}t & \text{partie 1} \\ R \cos \left[ \frac{\Lambda}{2\pi R}t - \frac{\pi}{2} - \frac{L-a}{R} \right] - \frac{1}{2}(L-a) & \text{partie 2} \\ \frac{3}{2}(L-a) + \pi R - \frac{\Lambda}{2\pi}t & \text{partie 3} \\ R \cos \left[ -\frac{\Lambda}{2\pi R}t + \frac{\pi}{2} + \frac{\Lambda}{R} \right] - \frac{1}{2}(L-a) & \text{partie 4} \end{cases} \\
 y(t) &= \begin{cases} -R & \text{partie 1} \\ R \sin \left[ \frac{\Lambda}{2\pi R}t - \frac{\pi}{2} - \frac{L-a}{R} \right] & \text{partie 2} \\ R & \text{partie 3} \\ R \sin \left[ -\frac{\Lambda}{2\pi R}t - \frac{\pi}{2} + \frac{\Lambda}{R} \right] & \text{partie 4} \end{cases}
 \end{aligned}$$

#### 4.1. Vers la réalisation de motifs arbitraires : exemple de l'impression de motifs en parallèle

où  $R = d + a/2$ ,  $\Lambda$  est le périmètre de la cavité et  $t : 0 \rightarrow 2\pi$  sur le contour.

Cependant, afin de pouvoir facilement corriger ce profil et optimiser les caractéristiques des spots lumineux générés par la fente sub-longueur d'onde, nous avons ensuite choisi de décomposer celui-ci selon des séries de Fourier. En effet, cette décomposition permet de modifier la forme de la cavité en jouant directement sur les coefficients de Fourier des différentes harmoniques mises en jeu, technique qui favorise en particulier le test des performances de profils relativement complexes. Nous recherchons alors une expression de ces coordonnées  $x$  et  $y$  de la forme :

$$\begin{aligned} x(t) &= \sum_{n=-N}^N a_n e^{jnt} \\ y(t) &= \sum_{n=-N}^N b_n e^{jnt} \end{aligned}$$

qui, pour des raisons de symétrie respectent les conditions suivantes :

$$\begin{cases} x(t) = x(-t) \\ x(t + \pi) = -x(t) \\ y(t) = -y(-t) \\ y(t + \pi) = -y(t) \end{cases}$$

On a :

$$\begin{aligned} x(t + \pi) &= \sum_{n=-N}^N a_n e^{jn(t+\pi)} = \sum_{n=-N}^N a_n e^{jnt} e^{jn\pi} \\ -x(t) &= - \sum_{n=-N}^N a_n e^{jnt} = \sum_{n=-N}^N a_n e^{jnt} e^{j(2p+1)\pi} \quad \text{avec } p \text{ un entier} \end{aligned}$$

Par conséquent :

$$\begin{cases} x(t + \pi) = -x(t) \\ y(t + \pi) = -y(t) \end{cases} \implies n = 2p + 1 : \text{on ne garde que les harmoniques impaires}$$

Or, les premiers tests effectués indiquent également que les coefficients relatifs à ce type de décomposition vérifient :

$$\begin{cases} a_{-n} = a_n^* \\ b_{-n} = b_n^* \end{cases}$$

Les conditions  $x(-t) = x(t)$  et  $y(-t) = -y(t)$  conduisent alors à :

$$\begin{aligned} x(-t) = x(t) &\iff a_n = a_{-n} = a_n^* \implies x(t) = \sum_{n=-N}^N a_n \cos nt \\ y(-t) = -y(t) &\iff b_n = -b_{-n} = -b_n^* \implies y(t) = \sum_{n=-N}^N b_n \sin nt \end{aligned}$$



et finalement, par symétrie :

$$x(t) = \sum_{n=0}^N a_{n+1} \cos[(2n+1)t]$$

$$y(t) = \sum_{n=0}^N b_{n+1} \sin[(2n+1)t]$$

Ces coordonnées donnent le profil initial de la cavité à insérer autour de l'ouverture sub-longueur d'onde. Toutefois, la précision de celui-ci dépend aussi du nombre d'harmoniques  $N$  pris en compte lors de la décomposition. Afin de limiter au maximum le temps de calcul de notre structure, nous avons donc cherché le nombre d'harmoniques minimal nécessaire à la reproduction conforme du profil analytique ovale. Les tests que nous avons effectués indiquent alors que le profil obtenu est identique au profil original à partir de  $N = 7$ , valeur que nous avons choisie. Les coefficients de Fourier obtenus dans ce cas sont présentés dans le tableau 4.1.

TAB. 4.1: Coefficients de Fourier associés à chaque harmonique des coordonnées  $x$  et  $y$  du profil ovale de la cavité. Les dimensions de la cavité sont  $L = 570$  nm,  $a = 50$  nm et  $d = 240$  nm.

Harmonique	x(t)	y(t)
n=0	453.4	316.9
n=1	72.9	63.4
n=2	1.6	8.2
n=3	-3.7	-3.3
n=4	0.5	-1.0
n=5	0.9	0.4
n=6	-0.3	0.9
n=7	-0.4	-0.8

Ces données montrent que les coefficients les plus importants restent ceux des deux premières harmoniques pour chacune des coordonnées  $x$  et  $y$ . Dans la suite, nous jouerons donc en priorité sur ces paramètres pour modifier le profil de la cavité et optimiser les caractéristiques des spots lumineux générés. Nous allons détailler la démarche que nous avons suivie.

#### 4.1.2.2 Optimisation

Le principe de cette optimisation reste globalement le même que celle effectuée au chapitre précédent dans le cas de la nanosource à miroirs de Bragg pour plasmons. En effet, il s'agit aussi ici de maximiser l'intensité, le contraste et le confinement de spots lumineux générés en sortie d'une fente sub-longueur d'onde. Nous allons brièvement reprendre les grandes étapes de cette optimisation, l'ensemble des codes mis en jeu étant regroupés en annexe.

#### 4.1. Vers la réalisation de motifs arbitraires : exemple de l'impression de motifs en parallèle

De même que précédemment, la base de cette optimisation consiste donc à calculer le champ électromagnétique généré dans la structure. Celle-ci se compose d'une fente sub-longueur d'onde remplie d'air, de longueur 570 nm et de largeur 50 nm, percée dans un film métallique d'argent de 50 nm d'épaisseur et surmontée d'une cavité du même métal de profil variable. Concernant les autres dimensions de cette structure, nous avons ensuite fixé la hauteur de la cavité à 180 nm, dimension qui correspond à celle de la nanosource détaillée au chapitre précédent. De même, nous avons également choisi une distance entre les parois de la cavité et les bords de la fente égale à 240 nm, configuration qui donne, selon une étude paramétrique que nous avons effectuée, la plus forte intensité de champ en sortie de la structure. Enfin, l'ensemble est réalisé sur un substrat de verre recouvert d'une couche de 150 nm de PMMA et est éclairé en incidence normale par une onde plane de longueur d'onde 532 nm et polarisée perpendiculairement à l'axe de la fente. La construction en trois dimensions de cette géométrie à partir des différents coefficients de Fourier du profil de la cavité est donnée dans le fichier *Calcul-structure-3D* en annexe.

L'étape suivante revient ensuite à extraire les différents paramètres des spots lumineux de sortie à partir de la carte de champ de cette structure (fichier *Extraction-parametres-3D*). Or, nous avons vu que l'objectif de cette optimisation était la génération de cinq spots lumineux identiques. Afin d'obtenir les paramètres de ces spots, nous avons donc modélisé le profil d'intensité obtenu en sortie de la fente par cinq gaussiennes de mêmes caractéristiques, espacées de 120 nm (fichiers *Gaussienne-3D* et *Residus-3D*), distance qui sépare les maxima de champ dans les profils présentés précédemment pour la fente de 570 nm de longueur. De même que dans le cas de la nanosource à miroirs de Bragg pour plasmons, la détermination numérique des paramètres de ces gaussiennes permet alors d'accéder à l'intensité maximale  $I_{\max}$ , au contraste  $C$  et à la largeur à mi-hauteur  $\Phi_{\text{spot}}$  des spots réalisés. Néanmoins, afin de limiter l'influence des effets de pointe sur le profil obtenu, ces caractéristiques ont aussi été évaluées à partir du profil de champ généré à 10 nm de la sortie de l'ouverture.

Enfin, nous avons lancé la boucle d'optimisation à partir du fichier *Calcul-optimisation-3D*. De même que précédemment, celle-ci s'effectue à l'aide d'une méthode d'optimisation locale et consiste ainsi à modifier pas à pas la géométrie de la structure (ici le profil de la cavité, via la modification pas à pas de ses coefficients de Fourier) de manière à minimiser la fonction de mérite (fichier *Fonction-merite-3D*) :

$$f = -\frac{I_{\max}}{I_{\max}^0} - \frac{C}{C^0} + \frac{\Phi_{\text{spot}}}{\Phi_{\text{spot}}^0}$$

où  $I_{\max}^0$ ,  $C^0$  et  $\Phi_{\text{spot}}^0$  sont respectivement l'intensité, le contraste et la taille des spots lumineux relatifs à la structure avant optimisation (profil de cavité ovale), minimisation qui permet alors d'aboutir à la génération de spots d'intensité, de contraste et de confinement maximaux.

Concernant ensuite les détails de cette optimisation et en particulier le calcul des différents profils de cavité mis en jeu, le profil ovale initial est ici obtenu par les programmes *Contour-ovale* (profil analytique  $(x, y)(t)$ ) et *Coeff-contour-ini* (coefficients de Fourier associés). Toutefois, afin de limiter le maillage et donc le temps de calcul de la structure, nous avons décomposé ce profil uniquement selon 20 segments de droite. Puis, le calcul plus général des coordonnées des parois de la cavité en fonction des coefficients de Fourier d'un profil quelconque (nécessaire pour

la construction des différentes géométries à évaluer) est effectué par la fonction *Coordonnees-contour*.

Enfin, nous avons vu précédemment que le nombre d'harmoniques du profil initial de la cavité était de 8 ( $N = 7$ ) pour chacune des coordonnées  $x$  et  $y$  des parois de celle-ci. Nous avons donc en théorie  $2 * 8 = 16$  paramètres à optimiser. Cependant, afin de limiter le temps de calcul de ces paramètres, nous avons ici choisi de nous concentrer uniquement sur les deux premiers coefficients de Fourier de chaque coordonnée, coefficients dont nous avons montré précédemment qu'ils possédaient les plus grandes valeurs. Les résultats de cette optimisation sont alors présentés dans le paragraphe suivant.

### 4.1.3 Résultats

Le profil de la cavité obtenue est présenté sur l'image du haut de la figure 4.4. Pour comparaison, le profil ovale initial est également donné. Ce profil correspond, dans le cadre de la décomposition en série de Fourier détaillée précédemment, aux coefficients :

- pour  $x(t)$  : [453.4-**2.5** ; 72.9+**0.5** ; 1.6 ; -3.7 ; 0.5 ; 0.9 ; -0.3 ; -0.4]

- pour  $y(t)$  : [316.9+**3.5** ; 63.4+**18** ; 8.2 ; -3.3 ; -1.0 ; 0.4 ; 0.9 ; -0.8]

où les valeurs indiquées en gras sont les modifications apportées lors de l'optimisation et où les coefficients sont listés par ordre d'harmonique croissante.

Ce profil reste tout d'abord relativement proche de celui initial ovale, ce qui signifierait que le choix d'une cavité dont le profil entoure de manière uniforme l'ouverture sub-longueur d'onde réalisée peut en première approximation être suffisant pour évaluer les performances du dispositif effectué. Ce point est important, puisqu'il faciliterait considérablement l'élaboration des cavités à insérer autour des ouvertures et permettrait ainsi d'envisager la génération de champs de formes complexes.

Cependant, l'obtention d'un profil proche du profil initial pourrait aussi être une conséquence de la méthode d'optimisation choisie et ne pas correspondre au profil réellement optimal. En effet, pour des raisons de rapidité et de simplicité d'algorithme, nous avons ici utilisé une méthode d'optimisation locale à base de simplex. Or, ce type de méthode ne donne que l'optimum le plus proche de la structure initiale dont est partie l'optimisation. Le profil trouvé pourrait alors n'être qu'uniquement un optimum local et être complètement différent de l'optimum global qui pourrait être obtenu par le biais de méthodes d'optimisation plus complexes, à base par exemple d'algorithmes génétiques. Afin de répondre à ce problème, nous avons donc lancé quelques simulations complémentaires, notamment en modifiant les paramètres de cette structure initiale. Toutefois, l'avancement de celles-ci ne nous permet pas encore de conclure entre ces deux hypothèses. Nous garderons donc ce premier profil dans la suite.

L'image du bas de la figure 4.4 montre alors une carte de l'intensité du champ générée à 10 nm de la sortie de la structure après optimisation de la cavité. L'ensemble est ici éclairé en incidence normale par une onde plane à 532 nm polarisée perpendiculairement à l'axe de la fente. Cette simulation met toujours en évidence la formation de cinq maxima de champ en sortie de la fente sub-longueur d'onde. Néanmoins, contrairement à la carte de champ présentée au début de ce chapitre, l'intensité de ceux-ci semble relativement homogène. Le tableau 4.2

#### 4.1. Vers la réalisation de motifs arbitraires : exemple de l'impression de motifs en parallèle

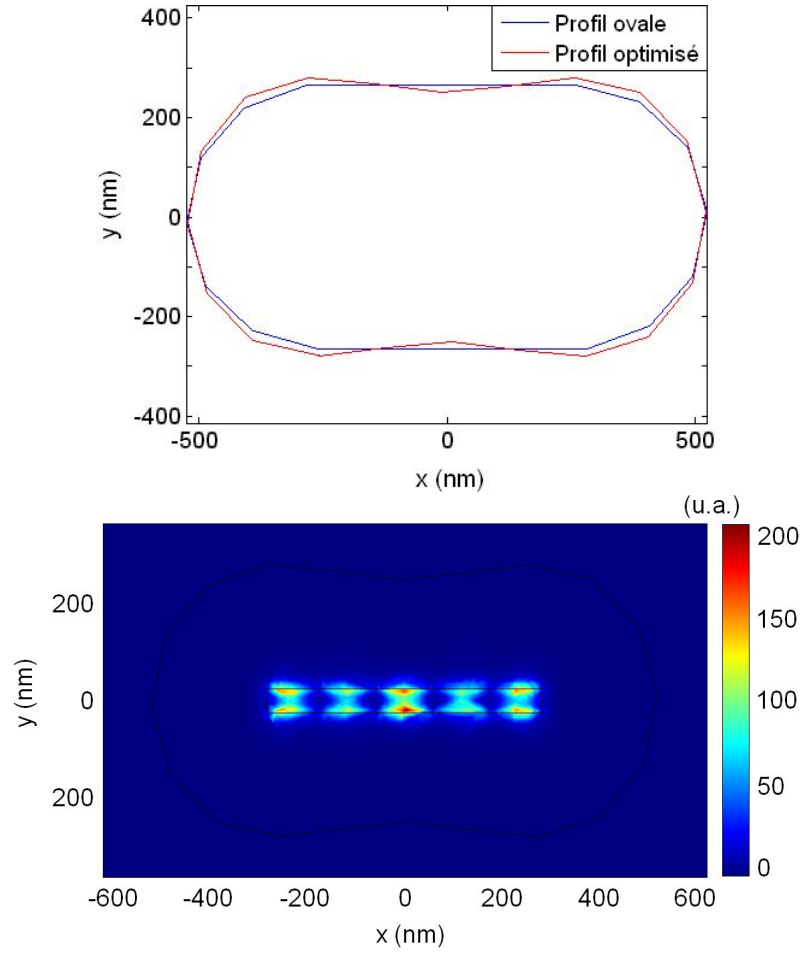


FIG. 4.4: **Résultats de l'optimisation du profil de la cavité.** En haut : profil de la cavité (en rouge). Pour comparaison, le profil initial ovale est également tracé (en bleu). En bas : carte de l'intensité du champ en sortie de la structure (vue de dessus) calculée par la méthode des éléments finis.

rassemble ainsi les différentes caractéristiques de ces spots, mesurées d'une part à partir de la modélisation du profil correspondant par une série de cinq gaussiennes (vision globale) et d'autre part obtenues directement à partir du profil d'intensité brut extrait de la carte de champ réalisée (vision individuelle de chaque maximum). Pour comparaison, les caractéristiques des mêmes spots lumineux générés par une fente isolée sans cavité et par une fente entourée de la cavité ovale de profil non optimisé sont également présentées.

Ces valeurs montrent bien l'intérêt de l'ajout de la cavité. En effet, de même que dans le cas de la nanosource en deux dimensions détaillée au chapitre précédent, les propriétés des spots de sortie, notamment leur intensité, ont été améliorées. Le rapport entre l'intensité obtenue pour le cas de la fente seule et celui de la fente entourée de la cavité métallique est d'ailleurs le même que précédemment, de l'ordre d'un facteur 9 à 10. Enfin, l'homogénéité du motif total est également meilleure, ce qui démontre la faisabilité de l'impression de motifs en parallèle par cette nanosource.

Néanmoins, plusieurs points pourraient être encore améliorés. En effet, la proximité des performances obtenues pour la cavité de profil ovale et optimisé laisse penser que la forme de celle-ci peut encore évoluer. En dehors du choix d'une autre méthode d'optimisation, ces améliorations pourraient tout d'abord passer par une augmentation du pas de discrétisation

TAB. 4.2: Récapitulatif des caractéristiques des spots lumineux générés pour une fente isolée et pour la structure avec une cavité de profil ovale ou optimisé.

Caractéristique	Fente isolée	Fente +cavité ovale	Fente +cavité optimisée
$I_{\max}$ moyen (u.a.)	15	120	139
Différence d'intensité entre maxima (pourcents)	60	57	52
$C$ moyen (pourcents)	58	56	63
$\Phi_{\text{spot}}$ moyen (nm)	80	40	40

du profil de la cavité. Celui employé ici reste en effet relativement grand ( $\pi/10$  sur un profil total correspondant à  $2\pi$ ), ce qui limite les géométries possibles et laisse imaginer qu'un profil plus précis pourrait encore améliorer les performances du dispositif. De même, le nombre de coefficients de Fourier pris en compte dans l'optimisation pourrait être augmenté. Cependant, ces modifications impliquent d'une part de raffiner le maillage de la structure pour le calcul du champ électromagnétique généré au sein de celle-ci et d'autre part augmentent le nombre d'itérations de la boucle d'optimisation. Leur mise en place élèvera donc aussi considérablement le temps et la mémoire nécessaires à l'obtention du résultat.

Dans cette partie, nous avons montré à travers un exemple que l'adaptation de la géométrie de la nanosource étudiée dans le chapitre précédent conduisait à la formation de motifs plus complexes qu'un spot lumineux unique. Cette structure pourrait donc être utilisée pour effectuer des lithographies plus variées, voire permettre l'impression de motifs arbitraires, résultat qui élargit le champ d'applications de ce type de dispositif. Dans la suite de ce chapitre, nous allons poursuivre dans cette voie et ainsi montrer une autre évolution possible de cette source, à savoir son adaptation en longueur d'onde.

## 4.2 Vers une adaptation de la longueur d'onde : exemple de la microélectronique

Dans ce manuscrit, nous avons jusqu'à présent cherché à déterminer les performances intrinsèques de dispositifs plasmoniques. Nous nous sommes donc placés dans des configurations très favorables à l'excitation de plasmons, où ces ondes possèdent notamment de grandes distances de propagation. Cependant, les conditions d'excitation de plasmons de surface ne se limitent pas au couple argent/longueur d'onde d'illumination de 532 nm. L'objectif de cette partie consiste ainsi à donner un bref aperçu des différentes possibilités d'adaptation en longueur d'onde de ces systèmes. Après avoir donné une liste (non exhaustive) des différents matériaux pouvant supporter des plasmons en fonction de la longueur d'onde choisie, nous verrons en particulier que la nanosource étudiée dans le chapitre précédent peut par exemple fonctionner dans l'ultra-violet (UV). Nous détaillerons alors la démarche que nous avons suivie afin d'adapter cette source à

la longueur d'onde de 248 nm, actuellement utilisée pour certaines étapes de lithographie en microélectronique.

#### 4.2.1 Choix des matériaux

Nous avons montré au début de ce manuscrit que l'excitation de plasmons sur une interface métal/diélectrique donnée dépendait des permittivités respectives  $\varepsilon_m$  et  $\varepsilon_d$  de ces matériaux à la longueur d'onde  $\lambda$  d'illumination et était conditionnée par la relation de dispersion :

$$k_{\text{sp}} = \frac{2\pi}{\lambda} \sqrt{\frac{\varepsilon_m \varepsilon_d}{\varepsilon_m + \varepsilon_d}} = \frac{2\pi}{\lambda_{\text{sp}}}$$

où  $k_{\text{sp}}$  est la composante du vecteur d'onde des plasmons parallèle à l'interface métal/diélectrique. De même, nous avons vu que la distance de propagation  $d_x$  de ces plasmons le long de cette interface était donnée par  $1/2k_{\text{sp}}''$  où  $k_{\text{sp}}''$  est la partie imaginaire de  $k_{\text{sp}}$ .

De nombreuses combinaisons de matériaux semblent donc possibles pour supporter ces ondes. A titre d'exemple, les figures 4.5 et 4.6 dressent alors un aperçu de celles-ci. En effet, nous avons ici évalué pour plusieurs longueurs d'onde classiques (193, 248, 405 et 532 nm) la possibilité d'excitation de plasmons sur différents éléments du tableau de Mendeleiev associés à deux diélectriques, de l'air ( $n = 1$ ) et une résine photosensible ( $n = 1.7$ ). Les résultats sont présentés de la manière suivante : pour chaque élément étudié, l'existence ou non de plasmons est notifiée par la couleur respectivement verte ou rouge de la case correspondante. Les distances caractéristiques de ces plasmons sont ensuite notées en nanomètres autour du symbole de l'élément considéré : longueur d'onde à gauche, distance de propagation à droite, en haut pour le cas où le diélectrique est de l'air, en bas pour le cas où le diélectrique est du type résine photosensible.

Ces tableaux montrent tout d'abord que de nombreux et divers matériaux peuvent être utilisés pour supporter des plasmons. En effet, ces résultats indiquent qu'il existe pour chaque longueur d'onde plus d'une vingtaine d'éléments vérifiant la relation de dispersion ci-dessus, nombre qui reste un minimum puisque nous n'avons ici pas tenu compte des différents alliages possibles de ces matériaux.

De plus, les caractéristiques de ces plasmons sont ensuite assez variables, en particulier en ce qui concerne leur distance de propagation, qui peut passer de quelques dizaines de nanomètres à quelques dizaines de microns selon les matériaux et les longueurs d'onde mis en jeu. Cependant, les résultats obtenus montrent globalement une augmentation de ces distances de propagation au fur et à mesure que la longueur d'onde d'illumination augmente, celles-ci restant encore relativement faibles aux longueurs d'onde UV de 193 et 248 nm. Enfin, ces tableaux confirment aussi que le métal supportant des plasmons avec les plus grandes distances de propagation à la longueur d'onde de 532 nm est l'argent. En revanche, celui-ci est remplacé par l'aluminium aux autres longueurs d'onde plus faibles de 193, 248 et 405 nm.

Figure 1 displays two periodic tables showing the dispersion of the surface plasmon energy ( $E_s$ ) in eV as a function of the wavelength ( $\lambda$ ) in nm. The legend indicates the presence or absence of plasmons:

- Green box: Plasmons
- Red box: Pas de plasmons
- White box: Non évalué

The periodic tables are labeled with the element symbol and the corresponding plasmon energy in eV. The legend also includes the formula for the surface plasmon energy:

$$\lambda_{sp}^{air} X d_x^{air} / \lambda_{sp}^{resine} X d_x^{resine}$$

The figure shows the dispersion of the surface plasmon energy for two different wavelengths:  $\lambda = 193$  nm and  $\lambda = 248$  nm. The periodic tables are color-coded according to the legend, indicating the presence or absence of plasmons for each element at the given wavelength.





A titre d'illustration de cette possibilité d'adapter en longueur d'onde les dispositifs plasmoniques, nous avons alors cherché à modifier la nanosource décrite au chapitre précédent pour qu'elle puisse être insérée dans des dispositifs de lithographie utilisés en microélectronique, c'est-à-dire fonctionnant dans l'UV, par exemple à une longueur d'onde de 248 nm. C'est ce que nous allons développer dans la suite.

#### 4.2.2 Conception d'une nanosource fonctionnant à 248 nm

Dans ce paragraphe, nous allons tout d'abord détailler la démarche que nous avons suivie afin d'adapter la nanosource à une longueur d'onde d'illumination située dans l'ultra-violet. Nous donnerons ensuite quelques unes de ses caractéristiques.

##### 4.2.2.1 Détermination des dimensions de la structure

La première étape relative à la conception de cette nouvelle source consiste à choisir les matériaux (métal, diélectrique) dont elle sera constituée. En effet, ceux-ci fixent alors les caractéristiques des différents modes supportés par la structure qui, de même que dans le chapitre précédent, serviront ensuite de base pour la détermination des dimensions de celle-ci. Or, nous venons de voir que le métal supportant des plasmons dans l'UV avec les plus grandes distances de propagation était l'aluminium ( $n = 0.19 + 2.94i$  à 248 nm). Afin de maximiser les performances du dispositif réalisé, nous avons donc pris ce matériau comme métal. Concernant le choix du diélectrique, celui-ci doit être transparent à la longueur d'onde d'illumination. Nous avons alors choisi le saphir ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), d'indice  $n = 1.9$ .

Nous avons ensuite effectué le dimensionnement des différents éléments composant la source selon le même raisonnement que celui suivi au chapitre précédent concernant la conception de la nanosource à 532 nm. En effet, plusieurs règles ont déjà été établies. Nous avons tout d'abord montré que la largeur  $D$  de la cavité devait correspondre d'une part à la réflexion en phase des plasmons générés par la fente sub-longueur d'onde ( $D = p\lambda_{\text{sp}}/2$  où  $p$  est un entier) et d'autre part à l'excitation à la coupure d'un mode propre pair de la cavité. De même, nous avons vu que le pas  $a$  des réseaux situés en surface devait également conduire à l'excitation de plasmons sur cette interface ( $a = \lambda_{\text{sp}}$  pour une illumination en incidence normale) et être placés de telle manière que les plasmons générés par ce réseau soient en phase avec ceux issus de la diffraction par les coins supérieurs de la cavité (distance bord à bord entre la cavité et les réseaux  $d = p\lambda_{\text{sp}}/2$ ). Enfin, la hauteur de ces réseaux doit aussi être suffisamment faible pour ne pas trop diffracter et concentrer le champ incident sur cette zone et les profondeurs  $h$  de la cavité et  $e$  de la fente sont fixées de manière à maximiser l'intensité en sortie de celle-ci.

Afin de déterminer la largeur  $D$  de la cavité, nous avons donc, de même que précédemment, résolu en deux dimensions l'équation aux valeurs propres (3.1) des modes supportés par cette structure. Nous avons alors obtenu les solutions représentées sur l'image de gauche de la figure 4.7. Ce graphe fait de nouveau apparaître une succession de modes pairs (lignes en trait plein bleues) et impairs (lignes pointillées rouges), dont on peut alors extraire la largeur de la cavité correspondant à l'excitation à la coupure du premier mode pair de celle-ci :  $D = 105$  nm.

Or, la relation de dispersion donnée dans le paragraphe précédent indique ensuite que l'inter-

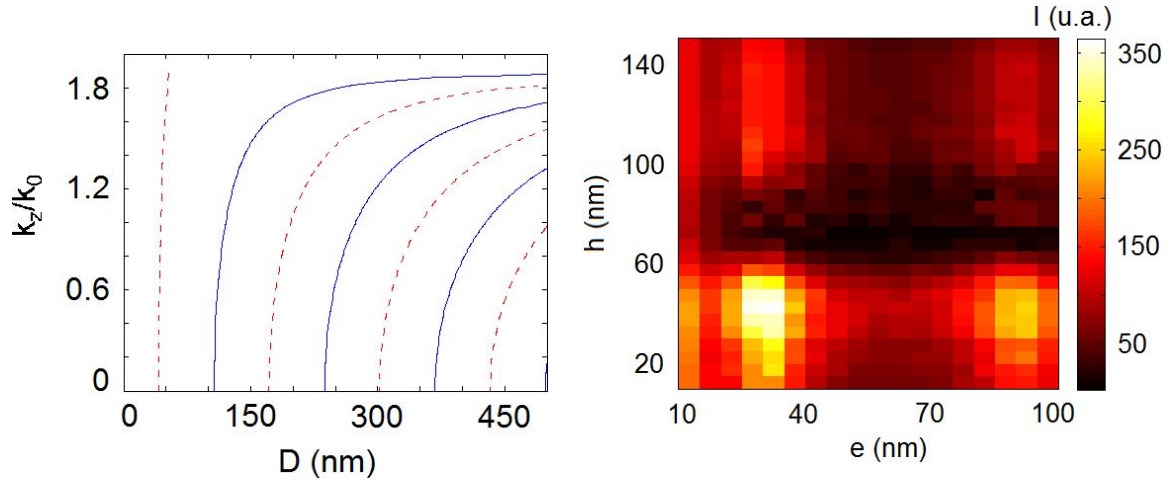


FIG. 4.7: **Résultats des calculs pour le dimensionnement de la source fonctionnant à 248 nm.** A gauche : solutions de l'équation aux valeurs propres des modes de la cavité. A droite : cartographie obtenue par la méthode des éléments finis de l'intensité maximale du champ en sortie du dispositif en fonction de la profondeur  $h$  de la cavité et  $e$  de la fente sub-longueur d'onde.

face aluminium/saphir éclairée à 248 nm supporte des plasmons de longueur d'onde  $\lambda_{sp} = 100$  nm. Par conséquent, cette largeur de cavité est aussi en accord avec la condition de réflexion en phase des plasmons générés par la fente. De même, la valeur de cette longueur d'onde nous permet de définir les dimensions et la position des réseaux placés à la surface de la cavité :  $a = 100$  nm et  $d = 50$  nm. Nous avons également fixé la hauteur de ces réseaux à une valeur faible de 5 nm.

Enfin, la dernière étape d'adaptation de cette nanosource consiste à déterminer les profondeurs  $h$  de la cavité et  $e$  de la fente sub-longueur d'onde. De même que dans le chapitre précédent, nous avons alors calculé en deux dimensions par la méthode des éléments finis l'intensité en sortie de la structure lors de son illumination par une onde plane à 248 nm polarisée perpendiculairement à l'axe de la fente. La cartographie obtenue en fonction des valeurs de  $e$  et  $h$  est présentée sur l'image de droite de la figure 4.7. Le maximum d'intensité correspond dans ce cas à  $h \simeq 40$  nm et  $e \simeq 30$  nm, hauteurs que nous avons donc choisies.

Dans ce paragraphe, nous avons détaillé les différentes modifications que nous avons apportées à la nanosource décrite au chapitre précédent afin que celle-ci fonctionne à 248 nm. Nous allons maintenant revenir sur les caractéristiques de ce nouveau dispositif.

#### 4.2.2.2 Caractéristiques

La figure 4.8 présente en effet le résultat de l'illumination de la structure par une onde plane à 248 nm polarisée perpendiculairement à l'axe de la fente. Il s'agit ici de la carte d'intensité du champ générée dans le système pour une fente sub-longueur d'onde de 10 nm de largeur et calculée en deux dimensions par la méthode des éléments finis.

Cette carte met d'abord en évidence la formation d'un spot lumineux en sortie de la fente, résultat qui démontre donc le fonctionnement de cette structure à 248 nm et ainsi la possibilité d'adapter en longueur d'onde la nanosource effectuée au chapitre précédent. De plus, la modé-

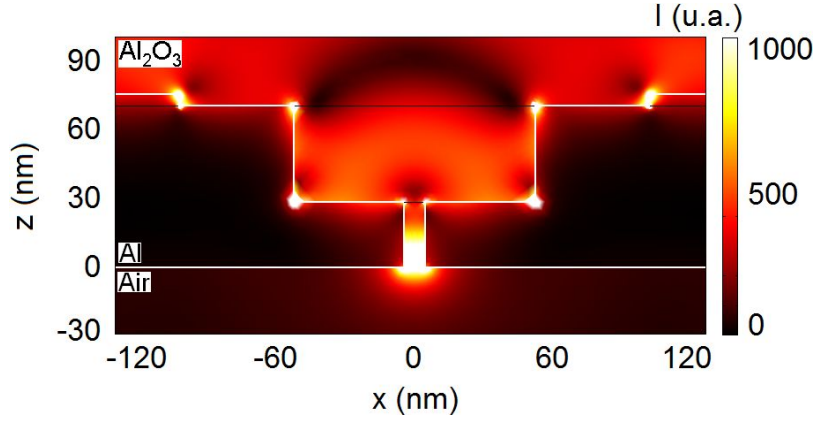


FIG. 4.8: **Carte d'intensité du champ dans la nanosource fonctionnant à 248 nm.** Le calcul est effectué en deux dimensions par la méthode des éléments finis en éclairant la structure par une onde plane à 248 nm polarisée perpendiculairement à l'axe de la fente.

lisation par une gaussienne du profil d'intensité obtenu à 10 nm de la sortie de la fente indique également que ce spot possède une largeur à mi-hauteur de 40 nm pour un contraste de l'ordre de 65 pourcents, caractéristiques qui valident la génération d'un spot intense et de faibles dimensions. Cependant, celui-ci reste aussi extrêmement localisé au niveau de la surface du métal puisque la distance d'atténuation en  $1/e$  de ce faisceau dans la couche d'air de sortie ne dépasse pas les 5 à 7 nm. Ce phénomène, dû aux faibles distances de propagation et d'atténuation des plasmons excités dans l'UV, limite considérablement les performances et applications de ce système. Dans le cas de l'utilisation de cette source pour insoler une couche de résine photosensible en microélectronique, cette faible distance d'atténuation nécessite par exemple de positionner la résine en contact direct avec la sortie de la source, ce qui complique la mise en oeuvre pratique de ce dispositif. De même, des mesures que nous avons effectuées à partir du calcul de cette structure par la méthode des éléments finis montrent que le profil d'intensité généré dans la couche de résine s'élargit et perd en contraste au fur et à mesure que l'on pénètre dans celle-ci. Ce phénomène réduit ainsi l'épaisseur de résine insolée avec un spot à haute résolution (c'est-à-dire avec un diamètre à mi-hauteur de l'ordre de 50 nm) à la dizaine de nanomètres, ce qui en microélectronique est insuffisant pour pouvoir utiliser les motifs de résine obtenus comme masques de gravure.

Dans cette partie, nous avons vu au travers d'un exemple que l'adaptation des dispositifs plasmoniques en longueur d'onde pouvait se faire facilement en modifiant les matériaux les constituant de manière à ce qu'ils supportent des plasmons à la longueur d'onde considérée et en ajustant ensuite les dimensions de ces structures afin de mettre en jeu des phénomènes physiques identiques. Cependant, les résultats obtenus montrent aussi que les performances de ces dispositifs dépendent fortement des caractéristiques des plasmons excités et notamment de leur distance de propagation. Ainsi, même si ces ondes existent en théorie aux longueurs d'onde UV, il apparaît clairement que ces systèmes plasmoniques sont plus efficaces aux longueurs d'ondes visibles. Dans ce cas, nous allons voir dans la suite que ces systèmes et en particulier la nanosource étudiée précédemment peuvent alors trouver de nombreuses applications en dehors du domaine de la lithographie.

### 4.3 Vers d'autres horizons

Les nanosources optiques suscitent un intérêt croissant dans de nombreux domaines de la physique. En effet, ces dispositifs permettent d'analyser et d'interagir avec la matière à l'échelle nanométrique. Cependant, la plupart des sources existantes génèrent un spot de taille encore trop élevée ou possèdent un mauvais rendement. Les caractères compact et efficace de la nanosource plasmonique détaillée au chapitre précédent nous invitent alors à penser que celle-ci pourrait être insérée dans de nombreux systèmes afin d'améliorer leurs performances. Nous allons en donner quelques exemples.

Cette nanosource serait tout d'abord particulièrement intéressante dans le domaine du stockage optique où elle pourrait être introduite dans des têtes de lecture/écriture à haute capacité, notamment dans des systèmes incluant des lentilles à immersion solide (SIL). De même que dans le cas de la lithographie, cette structure permettrait ainsi d'imprimer (mode écriture) des motifs de haute résolution dans le disque optique. La détection du changement de la topographie de ce disque lors de son balayage par la source, par exemple en analysant le champ diffracté en sortie de la tête optique, donnerait ensuite une lecture des données inscrites sur celui-ci. Ces têtes fonctionnant à une longueur d'onde de 405 nm, cette application nécessiterait cependant d'adapter la géométrie de la source pour une illumination à cette longueur d'onde, ce qui peut être réalisé facilement en choisissant l'aluminium comme métal supportant les plasmons.

Comme nous l'avons déjà mentionné au cours de ce manuscrit, une seconde application de ce type de source concerne l'imagerie. En effet, nous avons vu que cette structure était sélective en longueur d'onde, avec une bande passante autour de la longueur d'onde nominale de l'ordre de 50 nm. Il serait alors possible, en adaptant la géométrie à différentes longueurs d'onde d'utilisation telles que le rouge, le vert ou le bleu, de réaliser des dispositifs générant à l'échelle nanométrique des spots lumineux de couleurs différentes. Chaque source étant également relativement compacte, ces trois structures pourraient ensuite être assemblées pour former un pixel RGB complet et être à la base d'une imagerie à très haute résolution. L'illumination de ce système pourrait dans ce cas s'effectuer soit par un éclairage classique, soit en insérant directement un matériau luminescent en amont de celui-ci.

La génération d'un spot intense par cette nanosource ouvre aussi des perspectives en ce qui concerne l'élaboration de capteurs ultrasensibles, où l'utilisation de cette structure comme détecteur permettrait de réduire le niveau de bruit et d'améliorer le rendement de ces dispositifs. De même, le confinement du spot obtenu pourrait également être intéressant dans le cadre de la biologie ou de la microscopie, où la nanosource pourrait alors servir à analyser de très petits volumes.

Enfin, cette structure pourrait répondre à un problème technique relatif au domaine des pinces optiques. En effet, le piégeage de particules à des échelles sub-longueur d'onde s'effectue actuellement grâce à des spots lumineux générés par transmission à travers des films perforés. Cependant, étant donné le faible rendement de ce type de système, les lasers d'illumination sont des lasers de puissance difficiles à mettre en oeuvre. L'insertion d'une structure à plus haut rendement telle que la nanosource que nous avons étudiée permettrait alors d'utiliser des lasers de faible puissance plus facilement manipulables.

## 4.4 Conclusions

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés aux différentes applications possibles de la lithographie assistée par plasmons de surface et plus généralement des dispositifs optiques mettant en jeu des plasmons. Ainsi, nous avons montré, notamment à partir du cas particulier de la nanosource étudiée au chapitre précédent, que cette technique pouvait facilement répondre à différents types de besoins.

Une impression de motifs variés voire arbitraires peut tout d'abord être effectuée en réalisant une ouverture sub-longueur d'onde de forme adaptée dans un film métallique et en insérant autour de celle-ci une cavité dont les parois sont en première approximation disposées à égale distance des bords de l'ouverture.

Même si les résultats sont plus concluants dans le domaine visible, la longueur d'onde d'illumination de ces dispositifs peut ensuite être modulée en fonction des conditions d'utilisation, en modifiant uniquement les matériaux les constituant et la taille des structures mises en jeu.

Enfin, nous avons vu que les applications des dispositifs optiques assistés par plasmons de surface dépassaient aussi largement le cadre de la lithographie et touchaient de nombreux domaines, comme le stockage optique et l'imagerie ou encore la microscopie et les pinces optiques.

# Conclusion générale

L'objectif de cette thèse était d'étudier les différentes contraintes et performances associées à la réalisation de lithographie assistée par plasmons de surface pour, dans un second temps, déterminer les conditions d'utilisation et les applications possibles de cette nouvelle technique.

Le premier chapitre de ce manuscrit nous a tout d'abord permis d'introduire et de définir plusieurs concepts relatifs à la lithographie et aux plasmons de surface. Afin de fixer le contexte de cette thèse, nous avons également dressé un état de l'art des différentes méthodes employées dans la littérature pour effectuer une lithographie en champ proche assistée par plasmons.

Puis, nous nous sommes intéressés en particulier à une technique permettant d'imprimer des motifs relativement complexes, la lithographie par interférence de plasmons de surface. Nous avons ainsi montré, aussi bien au niveau théorique qu'au niveau expérimental, que ce procédé conduisait à la formation de motifs conformes au champ d'interférences généré et pouvait donc potentiellement créer des motifs arbitraires. Cependant, nous avons aussi mis en évidence que la résolution de cette technique était limitée à la moitié de la longueur d'onde des plasmons mis en jeu et nécessitait que ces ondes aient de fortes distances de propagation.

Afin de répondre à ce problème de résolution, nous avons ensuite conçu une nanosource optique efficace générant en champ proche un spot lumineux intense et localisé. La réalisation expérimentale d'une première variante de cette source à base d'une cavité à miroirs de Bragg pour plasmons a tout d'abord validé le fonctionnement de ce dispositif. Puis, nous avons optimisé ce système et démontré théoriquement la formation d'un spot lumineux dont le diamètre dépend uniquement de la taille de l'ouverture sub-longueur d'onde qui le génère et dont le rendement peut atteindre les 30 pourcents.

Enfin, nous avons vu dans le dernier chapitre que la technique de lithographie assistée par plasmons de surface pouvait être facilement adaptée en fonction des besoins, notamment en ce qui concerne la longueur d'onde d'illumination des dispositifs mis en jeu et/ou les matériaux utilisés. Nous avons également montré que ces dispositifs sont plus efficaces dans le visible que dans l'UV.

Ces différents résultats nous amènent alors aux conclusions suivantes. Concernant tout d'abord les conditions d'utilisation de la technique de lithographie assistée par plasmons de surface, la plus grande contrainte reste la nécessité d'instaurer un fort contact entre le dispositif plasmonique générant le champ d'insolation et la couche de résine à imprimer. Cependant, cet

inconvenient peut être compensé par l'extrême souplesse de ce procédé, aussi bien en terme de motifs réalisables qu'au niveau des matériaux et des longueurs d'onde pouvant être utilisés pour effectuer cette lithographie. Concernant ensuite les applications possibles de cette technique, les faibles performances des dispositifs plasmoniques dans l'UV ainsi que la contrainte de contact mentionnée précédemment empêchent pour le moment la mise en place de celle-ci au niveau industriel en microélectronique. Le faible coût de cette technique permet toutefois d'envisager d'autres domaines d'applications, notamment pour des besoins de lithographie ponctuels et/ou spécifiques. De même, les concepts introduits dans ce manuscrit peuvent apporter des solutions bien au-delà du domaine de la lithographie et les dispositifs plasmoniques développés pourraient ainsi être employés pour améliorer les performances de nombreux systèmes, comme par exemple celles des têtes de lecture/écriture en stockage optique, des capteurs ultrasensibles ou encore des appareils d'imagerie et de microscopie.

# Liste des publications

## Brevet

- M. Consonni, J. Hazart et G. Léron del, "Dispositif de focalisation de lumière à des dimensions sub-longueur d'onde à fort rendement", déposé le 20/05/2008 à l'INPI (DD10587)

## Publications

- M. Derouard, J. Hazart, G. Léron del, R. Bachelot, P.M. Adam and P. Royer, "Polarization-sensitive printing of surface plasmon interferences", Optics Express **15**, 4238 (2007)

- M. Consonni, J. Hazart and G. Léron del, "Fabry-Pérot-type enhancement in plasmonic visible nanosource", Applied Physics Letters **94**, 051105 (2009)

- M. Consonni, J. Hazart, G. Léron del and A. Vial, "Nanometer scale light focusing with high cavity-enhanced output", Journal of Applied Physics **105** (2009)

- D. Macias, A. Vial, D. Barchiesi, G. Léron del, M. Derouard and J. Hazart, "Toward the synthesis of plasmonic nanostructures by means of stochastic optimization", Applied Computational Electromagnetics Society Journal (2008)

- M. Consonni et R. Bachelot, "Lithographie et manipulation basées sur l'optique des nanostructures métalliques", chapitre accepté pour publication dans le livre "Lithographie pour les Nano-Technologies : l'art de dessiner à l'échelle du nanomètre", Ed. Hermès

## Communications

- M. Derouard, J. Hazart, G. Léron del and R. Bachelot, "Surface plasmon interference printing in a photosensitive azo-dye polymer film", poster présenté à la conférence internationale Nanometa (Janvier 2007, Autriche)

- M. Derouard, J. Hazart, G. Léron del, R. Bachelot, P.M. Adam and P. Royer, "Polarization-sensitive printing of surface plasmon interferences", poster présenté à la conférence internationale SPP3 (Juin 2007, France)

- M. Consonni, J. Hazart and G. Léron del, "High output nanometer scale focusing device", poster présenté à la conférence internationale NFO10 (Septembre 2008, Argentine)





# Bibliographie

- [1] C. Kittel. *Introduction to solid states physics*. John Wiley and Sons, Inc. New York, 1996.
- [2] S. A. Maier et al. Plasmonics : Localization and guiding of electromagnetic energy in metal/dielectric structures. *Journal of Applied Physics*, 98 :011101, 2005.
- [3] D. Courjon and C. Bainier. *Le champ proche optique, Théorie et applications*. Springer, 2001.
- [4] W. Srituravanich et al. Plasmonic nanolithography. *Nano Letters*, 4 :1085–1088, 2004.
- [5] J. Van Bladel. *Singular electromagnetic field and sources*. IEEE, Oxford, 1995.
- [6] A. Tarun et al. Apertureless optical near-field fabrication using an atomic force microscope on photoresists. *Applied Physics Letters*, 80 :3400–3402, 2002.
- [7] K. Dickmann et al. Focusing of laser radiation in the near-field of a tip (folant) for applications in nanostructuring. *Surface and interface analysis*, 25 :500–504, 1997.
- [8] Y. F. Lu et al. Laser-induced nano-oxidation on hydrogen-passivated ge (100) surfaces under a scanning tunneling microscope tip. *Applied Physics Letters*, 75 :2359–2361, 1999.
- [9] Y. Hua et al. Nanoscale thermal lithography by local polymer decomposition using a heated atomic force microscope cantilever tip. *Journal of Micro/Nanolithography, MEMS and MOEMS*, 6 :023012, 2007.
- [10] M. B. Cortie et al. Plasmonic heating and its possible exploitation in nanolithography. *Physica B : Condensed Matter*, 394 :188–192, 2007.
- [11] P. Vettiger et al. The millipede : more than one thousand tips for future afm data storage. *IBM Journal of Research and Development*, 44 :323–340, 2000.
- [12] C. F. Bohren and D. R. Huffman. *Absorption and scattering of light by small particles*. Wiley, 1998.
- [13] C. Hubert et al. Near-field photochemical imaging of noble metal nanostructures. *Nano Letters*, 5 :615–619, 2005.
- [14] P. G. Kik et al. Metal nanoparticle arrays for near field optical lithography. *Proceedings of SPIE*, 2002.
- [15] A. F. Koenderink et al. Programmable nanolithography with plasmon nanoparticle arrays. *Nano Letters*, 7 :745–749, 2007.
- [16] T. W. Ebbesen et al. Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays. *Nature*, 391 :667–669, 1998.

- [17] O. J. F. Martin et al. Surface plasmon illumination scheme for contact lithography beyond the diffraction limit. *Microelectronic Engineering*, 67-68 :24–30, 2003.
- [18] L. Wang et al. Nanolithography using high transmission nanoscale bowtie apertures. *Nano Letters*, 6 :361–364, 2006.
- [19] D. B. Shao et al. Surface-plasmon-assisted nanoscale photolithography by polarized light. *Applied Physics Letters*, 86 :253107, 2005.
- [20] X. Luo et al. Surface plasmon resonant interference nanolithography technique. *Applied Physics Letters*, 84 :4780–4782, 2004.
- [21] Z-W. Liu et al. Surface plasmon interference nanolithography. *Nano Letters*, 5 :957–961, 2005.
- [22] D. B. Shao et al. Direct patterning of three-dimensional periodic nanostructures by surface-plasmon-assisted nanolithography. *Nano Letters*, 6 :2279–2283, 2006.
- [23] V. G. Veselago. The electrodynamics of substances with simultaneously negative values of  $\epsilon$  and  $\mu$ . *Soviet Physics Uspekhi*, 10, 1968.
- [24] J. B. Pendry. Negative refraction makes a perfect lens. *Physical Review Letters*, 85 :3966–3969, 2000.
- [25] S. Mimouni. *Enregistrement optique haute capacité impliquant le champ proche*. PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2007.
- [26] N. Fang et al. Sub-diffraction-limited optical imaging with a silver superlens. *Science*, 308 :534–537, 2005.
- [27] C. Hubert et al. Role of surface plasmon in second harmonic generation from gold nanorods. *Applied Physics Letters*, 90 :181105, 2007.
- [28] A. Bouhelier et al. Surface plasmon characteristics of tunable photoluminescence in single gold nanorods. *Physical Review Letters*, 95 :267405, 2005.
- [29] J. R. Krenn et al. Design of multipolar plasmon excitations in silver nanoparticles. *Applied Physics Letters*, 77 :3379–3381, 2000.
- [30] X. Guo et al. Large-area surface-plasmon polariton interference lithography. *Optics Letters*, 31 :2613–2615, 2006.
- [31] E. Silberstein et al. Use of gratings theories in integrated optics. *Journal of the Optical Society of America A*, 18 :2865–2875, 2001.
- [32] S. Bian et al. Photoinduced surface deformations on azobenzene polymer films. *Journal of Applied Physics*, 86 :4498–4508, 1999.
- [33] A. Natansohn et al. Photoinduced motions in azo-containing polymers. *Chemical Review*, 102 :4139–4175, 2002.
- [34] Y. Gilbert et al. Longitudinal anisotropy of the photoinduced molecular migration in azobenzene polymer films. *Optics Letters*, 31 :613–615, 2006.
- [35] T. Grosjean et al. Photopolymers as vectorial sensors of the electric field. *Optics Express*, 14 :2203–2210, 2006.

- [36] C. Hubert et al. Near-field polarization effects in molecular-motion-induced photochemical imaging. *Journal of Physical Chemistry*, 112 :4111–4116, 2007.
- [37] P. Lefin et al. Anisotropy of the photoinduced translation diffusion of azo-dyes. *Optical Materials*, 9 :323–328, 1998.
- [38] S. A. Maier et al. Terahertz surface plasmon-polariton propagation and focusing on periodically corrugated metal wires. *Physical Review Letters*, 97 :176805, 2006.
- [39] C. Ropers et al. Grating-coupling of surface plasmons onto metallic tips : a nanoconfined light source. *Nano Letters*, 7 :2784–2788, 2007.
- [40] S. Maier et al. Clear for launch. *Nature Physics*, 3 :301–303, 2007.
- [41] I. P. Radko et al. Surface plasmon polariton beam focusing with parabolic nanoparticle chains. *Optics Express*, 15 :6576–6582, 2007.
- [42] H. F. Ghaemi et al. Surface plasmons enhance optical transmission through subwavelength holes. *Physical Review B*, 58 :6779, 1998.
- [43] A. Degiron et al. Analysis of the transmission process through single apertures surrounded by periodic corrugations. *Optics Express*, 12 :3694–3700, 2004.
- [44] J. C. Weeber et al. Near-field characterization of bragg mirrors engraved in surface plasmon waveguides. *Physical Review B*, 70 :235406, 2004.
- [45] J. C. Weeber et al. Submicrometer in-plane integrated surface plasmon cavities. *Nano Letters*, 7 :1352–1359, 2007.
- [46] W. N. Hansen et al. Electric fields produced by the propagation of plane coherent electromagnetic radiation in a stratified medium. *Journal of the Optical Society of America*, 58 :380–390, 1968.
- [47] S. Kim et al. Optical beam focusing by a single subwavelength metal slit surrounded by chirped dielectric surface gratings. *Applied Physics Letters*, 92 :013103, 2008.



# **Annexes**



## Annexe A

# Calcul des caractéristiques des plasmons de surface

### A.1 Relation de dispersion

Il s'agit de résoudre les équations de Maxwell au niveau d'une interface métal/diélectrique et de trouver les caractéristiques relatives à des solutions localisées au niveau de cette interface (plasmons). Ce calcul peut au premier abord apparaître relativement délicat puisque les matériaux mis en jeu (métal et diélectrique) possèdent des propriétés physiques très différentes. En particulier, le métal supporte des courants à sa surface, ce qui n'est pas le cas du diélectrique. Cependant, nous allons montrer que cette différence peut être incluse dans la permittivité de chaque matériau, conduisant ainsi à la résolution d'une seule et même équation d'onde de part et d'autre de l'interface métal/diélectrique.

Prenons un milieu linéaire, homogène, isotrope et non magnétique. On a pour le champ électrique  $\vec{E}$  :

$$\text{rot}(\text{rot}\vec{E}) = \text{grad}(\text{div}\vec{E}) - \Delta\vec{E}$$

Or, la densité volumique de charges est nulle dans un métal. De même, nous considérerons que le diélectrique utilisé ne contient pas de charges. Au niveau de l'interface métal/diélectrique étudiée, la divergence de  $\vec{E}$  est donc nulle et l'équation précédente se simplifie selon :

$$\text{rot}(\text{rot}\vec{E}) = -\Delta\vec{E}$$

De plus, les équations de Maxwell permettent également d'écrire :

$$\begin{aligned}\text{rot}(\text{rot}\vec{E}) &= \text{rot}\left(-\frac{\partial\vec{B}}{\partial t}\right) = -\frac{\partial}{\partial t}(\text{rot}\vec{B}) \\ &= -\frac{\partial}{\partial t}\left(\mu_0\vec{j} + \mu_0\varepsilon_0\frac{\partial\varepsilon_r\vec{E}}{\partial t}\right)\end{aligned}$$

où  $\vec{B}$  est l'induction magnétique,  $\mu_0$ ,  $\varepsilon_0$  et  $\varepsilon_r$  sont respectivement la perméabilité du vide et les permittivités du vide et relative du milieu considéré et où  $\vec{j} = \sigma\vec{E}$  est la densité de courant ( $\sigma$  étant la conductivité diélectrique). Même si les courants n'existent que dans le cas du métal,



cette dernière relation peut également s'appliquer au cas du diélectrique en posant  $\sigma = 0$  et reste donc valable sur toute l'interface.

On choisit ici une dépendance temporelle des ondes électromagnétiques en  $\exp(-i\omega t)$ . On obtient alors :

$$\begin{aligned}\vec{\text{rot}}(\vec{\text{rot}}\vec{E}) &= -\frac{\partial}{\partial t} \left( \mu_0 \sigma \vec{E} - i\omega \mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E} \right) \\ &= - \left( -i\omega \mu_0 \sigma \vec{E} - \omega^2 \mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E} \right) \\ &= \frac{\omega^2}{\varepsilon_0 \mu_0} \left( \varepsilon_r + i \frac{\sigma}{\omega \varepsilon_0} \right) \vec{E}\end{aligned}$$

ce qui permet finalement d'aboutir à une équation d'onde unique :

$$\Delta \vec{E} + \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon_n \vec{E} = 0 \quad (\text{A.1})$$

$$\text{avec} \quad \begin{cases} \varepsilon_n = \varepsilon(\omega) = \varepsilon_r + i \frac{\sigma}{\omega \varepsilon_0} & \text{dans le métal} \\ \varepsilon_n = \varepsilon_1 = \varepsilon_r & \text{dans le diélectrique} \end{cases}$$

L'unicité de cette équation, valable aussi bien dans le métal que dans le diélectrique, est intéressante, puisqu'elle permet de rechercher des solutions de formes identiques de part et d'autre de cette interface. La figure A.1 donne alors quelques notations que l'on retrouve dans les calculs qui suivent.

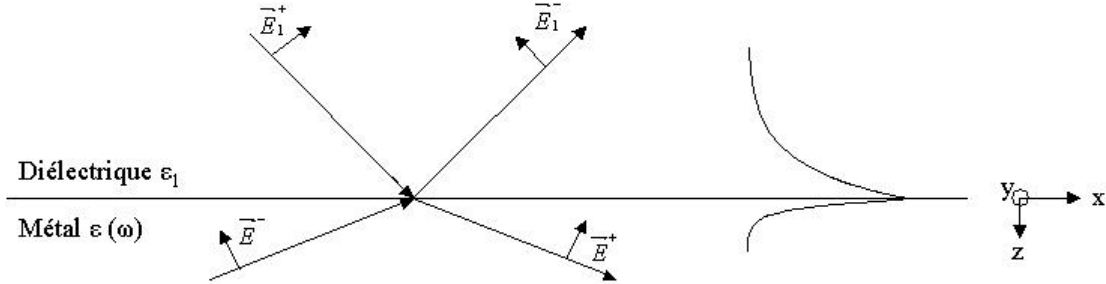


FIG. A.1: **Champ électromagnétique sur une interface diélectrique/métal.** À gauche : notations. Les variables relatives au diélectrique, de constante diélectrique  $\varepsilon_1$ , sont suivies de l'indice 1. Les variables relatives au métal, de constante diélectrique  $\varepsilon(\omega)$ , ne possèdent pas d'indice. À droite : allure schématique du champ magnétique des plasmons associés à cette interface (coupe selon  $z$ ).

Nous allons rechercher des solutions de type ondes planes, se propageant dans le plan ( $xOy$ ) de l'interface métal/diélectrique et localisées sur cette interface, c'est-à-dire décroissant exponentiellement de part et d'autre de celle-ci. Ces solutions sont donc de la forme :

$$\vec{E}_n(\vec{r}) = \vec{E}_n(z) \exp(ik_x x) \quad \text{avec} \quad \vec{E}_n(z) = \vec{E}_n^+ \exp(-K_n z) + \vec{E}_n^- \exp(K_n z)$$

$$\text{et} \quad \begin{cases} K_n = K > 0 & \text{dans le métal} \\ K_n = K_1 > 0 & \text{dans le diélectrique} \end{cases}$$

Cependant, ces solutions étant bornées, le champ électromagnétique qui leur est associé est nul à l'infini. En posant  $k_0 = \omega/c = 2\pi/\lambda$ , les seules solutions acceptables sont alors :

- dans le diélectrique :

$$z < 0 \quad \text{donc} \quad \vec{E}_n(\vec{r}) = \vec{E}_1(\vec{r}) = \vec{E}_1^- \exp(K_1 z) \exp(ik_x x) \quad \text{avec} \quad K_1^2 = \varepsilon_1 k_0^2 - k_x^2$$

- dans le métal :

$$z > 0 \quad \text{donc} \quad \vec{E}_n(\vec{r}) = \vec{E}(\vec{r}) = \vec{E}^+ \exp(-Kz) \exp(ik_x x) \quad \text{avec} \quad K^2 = \varepsilon(\omega)k_0^2 - k_x^2$$

Une allure schématique du champ magnétique associé à ces solutions est représentée sur la figure A.1 et montre effectivement une décroissance exponentielle de celui-ci de part et d'autre de l'interface métal/diélectrique.

Avec ces solutions, l'équation d'onde (A.1) se réécrit alors :

$$\begin{aligned} \Delta \vec{E} + \varepsilon_n k_0^2 \vec{E} &= 0 \\ \iff -k_x^2 \vec{E}_n(z) + \frac{\partial^2 \vec{E}_n(z)}{\partial z^2} + \varepsilon_n k_0^2 \vec{E}_n(z) &= 0 \\ \iff (\varepsilon_n k_0^2 - k_x^2) \vec{E}_n(z) + \frac{\partial^2 \vec{E}_n(z)}{\partial z^2} &= 0 \end{aligned}$$

En remplaçant on obtient donc :

$$\varepsilon_n k_0^2 - k_x^2 + K_n^2 = 0$$

Or, à l'interface, les composantes tangentielles de  $\vec{E}$ , normales de  $\vec{D}$  et tangentielles de  $\vec{H}$  sont continues. Les solutions décrites précédemment permettent alors d'écrire les expressions suivantes :

- continuité des composantes tangentielles de  $\vec{E}$  ( $E_x$  et  $E_y$ ) :

$$\begin{aligned} E_{1x}(z=0) = E_x(z=0) &\iff E_{1x}^- = E_x^+ \\ E_{1y}(z=0) = E_y(z=0) &\iff E_{1y}^- = E_y^+ \end{aligned}$$

- continuité des composantes normales de  $\vec{D}$  ( $D_z$ ) :

$$D_{1z}(z=0) = D_z(z=0) \iff \varepsilon_1 E_{1z}^- = \varepsilon(\omega) E_z^+$$

- continuité des composantes tangentielles de  $\vec{H}$  ( $H_x$  et  $H_y$ ) :

Les équations de Maxwell donnent ensuite :

$$\vec{r} \otimes \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t}$$

Or, les champs ont tous des dépendances en  $\exp(-i\omega t)$ . Donc :

$$\begin{aligned} \vec{r} \otimes \vec{E} &= i\omega \mu_0 \vec{H} \\ \iff \frac{\partial E_z}{\partial y} - \frac{\partial E_y}{\partial z} &= i\omega \mu_0 H_x \quad \text{et} \quad \frac{\partial E_x}{\partial z} - \frac{\partial E_z}{\partial x} = i\omega \mu_0 H_y \end{aligned}$$

La continuité des composantes tangentielles de  $\vec{H}$  s'écrit alors :

$$\begin{aligned} H_{1x}(z=0) = H_x(z=0) &\iff \frac{\partial E_{1z}}{\partial y} - \frac{\partial E_{1y}}{\partial z} = \frac{\partial E_z}{\partial y} - \frac{\partial E_y}{\partial z} \\ H_{1y}(z=0) = H_y(z=0) &\iff \frac{\partial E_{1x}}{\partial z} - \frac{\partial E_{1z}}{\partial x} = \frac{\partial E_x}{\partial z} - \frac{\partial E_z}{\partial x} \end{aligned}$$

soit

$$-K_1 E_{1y}^- = K E_y^+ \quad \text{et} \quad K_1 E_{1x}^- - ik_x E_{1z}^- = -K E_x^+ - ik_x E_z^+$$

En absence de charges libres, on a aussi :

$$\text{div} \vec{D} = 0 \iff \frac{\partial D_x}{\partial x} + \frac{\partial D_y}{\partial y} + \frac{\partial D_z}{\partial z} = 0$$

soit

$$ik_x E_{nx}(z) + \frac{\partial E_{nz}(z)}{\partial z} = 0$$

D'où

$$\frac{\partial^2 E_{nz}(z)}{\partial z^2} = -ik_x \frac{\partial E_{nx}(z)}{\partial z}$$

et finalement

$$ik_x \frac{\partial E_{nx}(z)}{\partial z} + (k_x^2 - \varepsilon_n k_0^2) E_{nz}(z) = 0$$

En remplaçant avec les solutions, on obtient donc :

$$ik_x E_{1x}^- + K_1 E_{1z}^- = 0 \quad \text{et} \quad ik_x E_x^+ - K E_z^+ = 0 \quad (\text{A.2})$$

De plus, les continuités des composantes tangentielles de  $\vec{E}$  (pour  $x$ ), normales de  $\vec{D}$  (pour  $z$ ) et tangentielles de  $\vec{H}$  (pour  $z$ ) :

$$E_{1x}^- = E_x^+ \quad \varepsilon_1 E_{1z}^- = \varepsilon(\omega) E_z^+ \quad K_1 E_{1x}^- - ik_x E_{1z}^- = -K E_x^+ - ik_x E_z^+$$

donnent :

$$\begin{aligned} K_1 E_x^+ - ik_x \frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon_1} E_z^+ + K E_x^+ + ik_x E_z^+ &= 0 \quad \text{et} \quad K_1 E_{1x}^- - ik_x E_{1z}^- + K E_{1x}^- + ik_x \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon(\omega)} E_{1z}^- = 0 \\ \iff (K_1 + K) E_x^+ + ik_x (1 - \frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon_1}) E_z^+ &= 0 \quad \text{et} \quad (K_1 + K) E_{1x}^- - ik_x (1 - \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon(\omega)}) E_{1z}^- = 0 \end{aligned}$$

soit

$$ik_x E_x^+ - k_x^2 \frac{1 - \frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon_1}}{K_1 + K} E_z^+ = 0 \quad (\text{A.3})$$

$$\iff ik_x E_{1x}^- + k_x^2 \frac{1 - \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon(\omega)}}{K_1 + K} E_{1z}^- = 0 \quad (\text{A.4})$$

La compatibilité des équations (A.2), (A.3) et (A.4) fait alors que :

$$\begin{aligned}
 K &= k_x^2 \frac{1 - \frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon_1}}{K_1 + K} \quad \text{et} \quad K_1 = k_x^2 \frac{1 - \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon(\omega)}}{K_1 + K} \\
 \Rightarrow \quad \frac{K}{K_1} &= \frac{1 - \frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon_1}}{1 - \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon(\omega)}} = \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon(\omega)}{\varepsilon_1} \frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon(\omega) - \varepsilon_1} = -\frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon} \\
 \Rightarrow \quad \frac{\varepsilon_1}{K_1} + \frac{\varepsilon(\omega)}{K} &= 0
 \end{aligned} \tag{A.5}$$

Cette équation peut ensuite se réécrire selon :

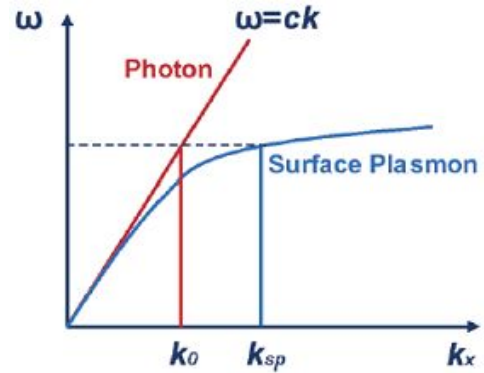
$$\begin{aligned}
 \frac{\varepsilon_1}{K_1} + \frac{\varepsilon(\omega)}{K} &= 0 \\
 \Rightarrow \quad \left( \frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon_1} \right)^2 &= \left( \frac{K}{K_1} \right)^2 = \frac{k_x^2 - \varepsilon(\omega)k_0^2}{k_x^2 - \varepsilon_1 k_0^2} \\
 \Rightarrow \quad \varepsilon^2(\omega)(k_x^2 - \varepsilon_1 k_0^2) &= \varepsilon_1^2(k_x^2 - \varepsilon(\omega)k_0^2) \\
 \Leftrightarrow \quad (\varepsilon^2(\omega) - \varepsilon_1^2)k_x^2 &= k_0^2(\varepsilon^2(\omega)\varepsilon_1 - \varepsilon_1^2\varepsilon(\omega)) \\
 \Leftrightarrow \quad k_x^2 &= k_0^2 \frac{\varepsilon^2(\omega)\varepsilon_1 - \varepsilon_1^2\varepsilon(\omega)}{\varepsilon^2(\omega) - \varepsilon_1^2} \\
 \Leftrightarrow \quad k_x^2 &= k_0^2 \frac{\varepsilon_1\varepsilon(\omega)(\varepsilon(\omega) - \varepsilon_1)}{(\varepsilon(\omega) + \varepsilon_1)(\varepsilon(\omega) - \varepsilon_1)}
 \end{aligned}$$

On obtient finalement la relation de dispersion des plasmons :

$$k_x = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon(\omega)}}$$

Le tracé de cette relation de dispersion et de celle des photons est donné de manière qualitative sur la figure A.2.

FIG. A.2: **Tracé qualitatif de la relation de dispersion des plasmons** [4]. La relation de dispersion des photons dans un milieu diélectrique homogène est donnée en comparaison (courbe rouge). On note que la courbe de dispersion des plasmons (courbe bleue) est toujours en dessous de celle des photons.



On remarque que la courbe de dispersion des plasmons est toujours en dessous de celle des photons. A une énergie donnée, la projection du vecteur d'onde des plasmons selon  $x$  est donc toujours plus grande que celle de l'onde lumineuse correspondante.

## A.2 Distances de propagation des plasmons

La détermination du vecteur d'onde des plasmons par la relation de dispersion précédente donne également accès à d'autres caractéristiques des plasmons, notamment à leur distance de propagation le long de l'interface métal/diélectrique et à leur distance d'atténuation perpendiculairement à cette interface. En effet, la distance d'atténuation des plasmons perpendiculairement à l'interface  $\delta_{\perp}$ , plus souvent connue sous le nom d'effet de peau, correspond à la distance au bout de laquelle l'amplitude du champ électrique a été divisée par  $e$  soit :

$$\begin{aligned} E(\delta_{\perp}) &= E(0)e^{-1} \\ \exp(-K_n \delta_{\perp}) &= e^{-1} \\ \delta_{\perp} &= \frac{1}{K_n} \end{aligned}$$

- dans le métal :

$$\begin{aligned} \delta_{\perp \text{ métal}} &= \frac{1}{K} = \frac{1}{\sqrt{k_x^2 - \varepsilon(\omega)k_0^2}} = \frac{1}{\sqrt{k_0^2 \left( \frac{\varepsilon_1 \varepsilon(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon(\omega)} - \varepsilon(\omega) \right)}} = \frac{1}{\sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon(\omega) - \varepsilon_1 \varepsilon(\omega) - \varepsilon^2(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon(\omega)}}} \\ \delta_{\perp \text{ métal}} &= \frac{1}{k_0} \sqrt{\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon(\omega)}{\varepsilon^2(\omega)}} = \frac{\lambda}{2\pi} \sqrt{\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon(\omega)}{\varepsilon^2(\omega)}} \end{aligned}$$

- dans le diélectrique :

$$\begin{aligned} \delta_{\perp \text{ diélectrique}} &= \frac{1}{K_1} = \frac{1}{\sqrt{k_x^2 - \varepsilon_1 k_0^2}} = \frac{1}{\sqrt{k_0^2 \left( \frac{\varepsilon_1 \varepsilon(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon(\omega)} - \varepsilon_1 \right)}} = \frac{1}{\sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon(\omega) - \varepsilon_1 \varepsilon(\omega) - \varepsilon_1^2}{\varepsilon_1 + \varepsilon(\omega)}}} \\ \delta_{\perp \text{ diélectrique}} &= \frac{1}{k_0} \sqrt{\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon(\omega)}{\varepsilon_1^2}} = \frac{\lambda}{2\pi} \sqrt{\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon(\omega)}{\varepsilon_1^2}} \end{aligned}$$

La distance de propagation des plasmons parallèlement à l'interface correspond ensuite au libre parcours moyen et est donnée par  $1/2k_x''$  avec  $k_x''$  tel que  $k_x = k_x' + ik_x''$ .

On pose  $\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega)$ . Dans le cas où  $|\varepsilon''(\omega)| \ll |\varepsilon'(\omega)|$ , on a :

$$\begin{aligned} k_x' &= k_0 \left( \frac{\varepsilon_1 \varepsilon'(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega)} \right)^{1/2} \\ k_x'' &= k_0 \left( \frac{\varepsilon_1 \varepsilon'(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega)} \right)^{3/2} \frac{\varepsilon''(\omega)}{2(\varepsilon'(\omega))^2} \end{aligned}$$

En effet :

$$\begin{aligned} k_x &= k_0 \left( \frac{\varepsilon_1 (\varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega))}{\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega)} \right)^{1/2} = k_0 \left( \frac{\varepsilon_1 (\varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega)) (\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega))}{(\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega))^2 + \varepsilon''^2(\omega)} \right)^{1/2} \\ \Rightarrow k_x &= k_0 \left( \frac{(\varepsilon_1 \varepsilon'(\omega) + i\varepsilon_1 \varepsilon''(\omega)) (\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega))}{(\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega))^2 + \varepsilon''^2(\omega)} \right)^{1/2} \\ \Leftrightarrow k_x &= k_0 \left( \frac{\varepsilon_1 \varepsilon'(\omega) (\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega)) + \varepsilon_1 \varepsilon''^2(\omega) + i(\varepsilon_1^2 \varepsilon''(\omega) + \varepsilon_1 \varepsilon'(\omega) \varepsilon''(\omega) - \varepsilon_1 \varepsilon'(\omega) \varepsilon''(\omega))}{(\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega))^2 + \varepsilon''^2(\omega)} \right)^{1/2} \\ \Leftrightarrow k_x &= k_0 \left( \frac{\varepsilon_1 \varepsilon'(\omega) (\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega)) + \varepsilon_1 \varepsilon''^2(\omega) + i(\varepsilon_1^2 \varepsilon''(\omega))}{(\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega))^2 + \varepsilon''^2(\omega)} \right)^{1/2} \end{aligned}$$

On pose :

$$a = \frac{\varepsilon_1 \varepsilon'(\omega)(\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega)) + \varepsilon_1 \varepsilon''^2(\omega)}{(\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega))^2 + \varepsilon''^2(\omega)} \quad b = \frac{\varepsilon_1^2 \varepsilon''(\omega)}{(\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega))^2 + \varepsilon''^2(\omega)}$$

Donc :

$$k_x = k_0(a + ib)^{1/2}$$

Or :

$$z = a + ib = \rho \exp(i\theta) \quad \text{avec} \quad \rho = |z| = \sqrt{a^2 + b^2} \quad \text{et} \quad \cos \theta = \frac{a}{|z|} \quad \sin \theta = \frac{b}{|z|}$$

Par conséquent :

$$\begin{aligned} (a + ib)^{1/2} &= (a^2 + b^2)^{1/4} \exp\left(i \frac{1}{2} \arcsin \frac{b}{\sqrt{a^2 + b^2}}\right) \\ \iff (a + ib)^{1/2} &= (a^2 + b^2)^{1/4} \left( \cos\left(\frac{1}{2} \arcsin \frac{b}{\sqrt{a^2 + b^2}}\right) + i \sin\left(\frac{1}{2} \arcsin \frac{b}{\sqrt{a^2 + b^2}}\right) \right) \end{aligned}$$

Dans le cas où  $|\varepsilon''(\omega)| \ll \varepsilon'(\omega)$  :

$$a \simeq \frac{\varepsilon_1 \varepsilon'(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega)} \quad \text{et} \quad b \simeq \frac{\varepsilon_1^2 \varepsilon''(\omega)}{(\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega))^2} \quad \text{donc} \quad b \ll a$$

$$\begin{aligned} (a + ib)^{1/2} &\simeq \sqrt{a} \left( \cos\left(\frac{1}{2} \arcsin \frac{b}{a}\right) + i \sin\left(\frac{1}{2} \arcsin \frac{b}{a}\right) \right) \simeq \sqrt{a} \left( \cos\left(\frac{b}{2a}\right) + i \sin\left(\frac{b}{2a}\right) \right) \\ (a + ib)^{1/2} &\simeq \sqrt{a} + i \frac{1}{2} \frac{b}{\sqrt{a}} \end{aligned}$$

Finalement, pour  $|\varepsilon''(\omega)| \ll \varepsilon'(\omega)$  :

$$\begin{aligned} k_x &= k_0 \sqrt{a} + ik_0 \frac{b}{2\sqrt{a}} \\ \implies k_x &= k_0 \left( \frac{\varepsilon_1 \varepsilon'(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega)} \right)^{1/2} + ik_0 \frac{\varepsilon_1^2 \varepsilon''(\omega)}{2(\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega))^2} \sqrt{\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega)}{\varepsilon_1 \varepsilon'(\omega)}} \\ \iff k_x &= k_0 \left( \frac{\varepsilon_1 \varepsilon'(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega)} \right)^{1/2} + ik_0 \frac{1}{2} \frac{\varepsilon_1^{3/2}}{(\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega))^{3/2}} \frac{\varepsilon''(\omega)}{\sqrt{\varepsilon'(\omega)}} \\ \iff k_x &= k_0 \left( \frac{\varepsilon_1 \varepsilon'(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega)} \right)^{1/2} + ik_0 \left( \frac{\varepsilon_1 \varepsilon'(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon'(\omega)} \right)^{3/2} \frac{\varepsilon''(\omega)}{2(\varepsilon'(\omega))^2} \end{aligned}$$



## Annexe B

# Codes de calcul pour l'optimisation du design de la nanosource à miroirs de Bragg

### B.1 Fichier principal de lancement de l'optimisation

#### Fichier Calcul-optimisation-2D

```
clear ;  
global fem
```

#### Définition des paramètres initiaux de la structure

```
X = [30 50 160 320 50] ; [largeur-trou épaisseur-Ag pas-reseau largeur-centre profondeur-reseau]  
h = -10 ; ordonnée du calcul dans la structure  
x = -2000 :2000 ; abscisse de calcul dans la structure
```

#### Initialisation

```
X0 = X ;  
(F,Emax0,C0,D0) = Extraction-parametres-2D(X0,x,h,[1 1 1]) ; calcul de la structure initiale  
P0 = [-Emax0,-C0,D0] ; paramètres initiaux pour l'optimisation
```

#### Optimisation

```
X-min = fminsearch('Extraction-parametres-2D',X0,[],x,h,P0) ;
```

#### Calcul de la structure après optimisation

```
(G,Emax,C,D) = Extraction-parametres-2D(X-min,x,h,[1 1 1]) ;  
postplot(fem, ...  
'tridata','normE-emwh','cont','internal', ...  
'tridlim',[0 1000], ...  
'trimap','jet(1024)', ...
```



```
'title','Surface : Champ électrique, norme [V/m]', ...
'refine',1, ...
'axisequal','off', ...
'axis',[-2000,2000,-350,350,-1,1]); tracé de l'intensité du champ dans la structure
```

## B.2 Extraction des caractéristiques du spot lumineux à partir du calcul FEM de la structure

### Fichier Extraction-parametres-2D

```
function [F,Emax,C,D,V] = Extraction-parametres-2D(X,x,h,P0)
global fem

X=abs(int16(X));
Calcul-structure-2D(X); Calcul du champ dans la structure
ordonnee-calcul = h; Ordonnée à laquelle on extrait les paramètres
```

### Définition des variables intermédiaires

```
(y,g,S) = deal(zeros(1,length(x)));
V = zeros(1,length(x));
G = zeros(1,length(x));
(Emax,Emin,C,D,F) = deal(zeros(1,1));
(X0,LB,UB,X-min) = deal(zeros(1,3));
P = zeros(1,3);
```

### Extraction du champ

```
y = ordonnee-calcul*ones(1,length(x));
V = postinterp(fem,'normE-emwh',[x;y]); Champ à l'ordonnée h
```

### Recherche de la largeur à mi-hauteur du spot

```
g = V-max(V)/2;
S = sign(g); donne 1 ou -1 selon le signe de la fonction
G = [S 0]+[0 S]; décalage pour avoir 0 quand S(j) != S(j+1)
i = find(G == 0,1,'first'); recherche du premier indice pour lequel G est nul
a = (g(i)-g(i-1))/(x(i)-x(i-1));
b = g(i-1)-a*x(i-1);
sigma = 2*abs(b/a); largeur à mi-hauteur calculée par la droite passant entre les deux points autour du zéro de g
```

### Modélisation du champ par une gaussienne

```
X0 = [max(V) min(V) sigma]; valeurs initiales des paramètres Emax Emin sigma (en nm)
```

LB = [max(V)-100 min(V)-100 0]; *minima des paramètres*  
 UB = [max(V)+100 min(V)+100 sigma+100]; *maxima des paramètres*  
 X-min = lsqnonlin('Residus-2D',X0,LB,UB,[],V,x); *paramètres après la modélisation*

#### Calcul des paramètres mis en jeu dans l'optimisation

E<sub>max</sub> = X-min(1); *champ maximum*  
 E<sub>min</sub> = X-min(2); *champ minimum (fond continu)*  
 C = (E<sub>max</sub>-E<sub>min</sub>)/(E<sub>max</sub>+E<sub>min</sub>); *contraste*  
 D = X-min(3); *largeur à mi-hauteur du spot*  
 P = [E<sub>max</sub> C D];  
 F = Fonction-merite-2D(P,P0); *calcul de la fonction de mérite*

### B.3 Calcul de la structure par le logiciel Comsol

#### Fichier Calcul-structure-2D

function [] = Calcul-structure-2D(X)  
 global fem

#### Définition des variables de la géométrie

largeur-trou = 30; *diamètre de la fente sub-longueur d'onde*  
 s-largeur-trou = num2str(largeur-trou);  
 epaisseur-Ag = X(2); *épaisseur du film métallique à perforer*  
 s-epaisseur-Ag = num2str(epaisseur-Ag);  
 pas-reseau = X(3); *pas des réseaux réfléchissants*  
 s-pas-reseau = num2str(pas-reseau);  
 largeur-centre = X(4); *largeur de la cavité*  
 s-largeur-centre = num2str(largeur-centre);  
 profondeur-reseau = X(5); *profondeur des réseaux réfléchissants*  
 s-profondeur-reseau = num2str(profondeur-reseau);  
 nombre-pas-reseau = 7; *nombre de périodes des réseaux réfléchissants*  
 s-nombre-pas-reseaux = num2str(nombre-pas-reseau);  
 largeur-structure = 4000; *étendue totale de la structure simulée*  
 s-largeur-structure = num2str(largeur-structure);  
 epaisseur-verre = 500; *épaisseur du substrat de verre*  
 s-epaisseur-verre = num2str(epaisseur-verre);  
 epaisseur-resine = 70; *épaisseur de la couche de résine photosensible*  
 s-epaisseur-resine = num2str(epaisseur-resine);  
 epaisseur-air = 300; *épaisseur de la couche d'air de sortie*  
 s-epaisseur-air = num2str(epaisseur-air);

```

nb-rect-sans-reseau = 8;
largeur-bande-laterale = largeur-structure/2-(largeur-centre/2+nombre-pas-reseau*pas-reseau);
s-largeur-bande-laterale = num2str(largeur-bande-laterale);

```

### Définition des constantes diélectriques des matériaux utilisés

```

fem.const = 'nGlass','1.48', ...
'nAg','0.05456-3.43029*i', ...
'nAir','1', ...
'nResist','1.69429-0.01514*i', ...
'nPMMA','1.49';

```

### Version Comsol utilisée

```

vrsn.name = 'COMSOL 3.2';
vrsn.ext = '';
vrsn.major = 0;
vrsn.build = 222;
vrsn.rcs = 'Name :';
vrsn.date = 'Date : 2005/09/01 18 : 02 : 30';
fem.version = vrsn;

```

### Définition de la géométrie

```

g1=rect2(s-largeur-structure,s-epaisseur-air,'base','corner','pos',num2str(- largeur-structure/2),
num2str(- epaisseur-air- epaisseur-resine),'rot','0'); air
g2=rect2(s-largeur-structure,s-epaisseur-resine,'base','corner','pos',num2str(- largeur-structure/2),num2str(-
epaisseur-resine),'rot','0'); résine
g3=rect2(s-largeur-structure,s-epaisseur-Ag,'base','corner','pos',num2str(- largeur-structure/2),'0','rot','0');
argent à percer
g4=rect2(s-largeur-structure,num2str(epaisseur-verre/2),'base','corner','pos',num2str(- largeur-
structure/2),s-epaisseur-Ag,'rot','0'); PMMA
g5=rect2(s-largeur-structure,num2str(epaisseur-verre/2),'base','corner','pos',num2str(- largeur-
structure/2),num2str(epaisseur Ag + epaisseur-verre/2),'rot','0'); verre
g6=rect2(s-largeur-trou,s-epaisseur-Ag,'base','corner','pos',num2str(- largeur-trou/2),'0','rot','0');
fente sub-longueur d'onde
g7=rect2(s-largeur-bande-laterale,s-profondeur-reseau,'base','corner','pos',num2str(- largeur-structure/2),s-
epaisseur-Ag,'rot','0'); bord extérieur gauche des réseaux
g8=rect2(s-largeur-bande-laterale,s-profondeur-reseau,'base','corner','pos',num2str(largeur-centre/2
+ nombre-pas-reseau*pas-reseau),s-epaisseur-Ag,'rot','0'); bord extérieur droit des réseaux

clear s
s.objs = cell(1,nb-rect-sans-reseau + 2*nombre-pas-reseau);
geom = (g1,g2,g3,g4,g5,g6,g7,g8);

```

```

reseau = cell(1,2*nombre-pas-reseau);
for n = 0 :nombre-pas-reseau-1 réseaux
reseau(1,n+1) = rect2(num2str(pas-reseau/2),s-profondeur-reseau,'base','corner','pos',num2str(-
largeur-centre/2 - (n+1/2)*pas-reseau),s-epaisseur-Ag,'rot','0');
reseau(1,nombre-pas-reseau + n+1) = rect2(num2str(pas-reseau/2),s-profondeur-reseau,'base',
'corner','pos',num2str(largeur-centre/2 + n*pas-reseau),s-epaisseur-Ag,'rot','0');
end
s.objs(1,1 :nb-rect-sans-reseau) = geom(1,1 :nb-rect-sans-reseau);
s.objs(1,nb-rect-sans-reseau+1 :length(s.objs)) = reseau(1,1 :2*nombre-pas-reseau);

fem.draw=struct('s',s);
fem.geom=geomcsg(fem);

```

### Maillage de la géométrie

```

fem.mesh=meshinit(fem);
raffinement du maillage :
fem.mesh=meshrefine(fem, ...
'mcase',0, ...
'rmethod','regular');
fem.mesh=meshrefine(fem, ...
'mcase',0, ...
'rmethod','regular');

```

### Définition des conditions aux limites

```

clear appl
appl.mode.class = 'InPlaneWaves';
appl.module = 'EM';
appl.border = 'on';
appl.assignsuffix = '-emwh';
clear prop
prop.field='TM';
prop.inputvar='lambda';
appl.prop = prop;
clear bnd
bnd.type = 'M','cont','M','M','M'; différents types de frontières (M : frontière adaptée, cont :
continuité)
bnd.betaTM = 0,0,'0.0201-0.0004*i','k-emwh','k-emwh'; vecteur d'onde associé à chaque type
de frontière
bnd.H0 = 0;0;0,0;0;0;0;0;0;0;0;0; ...
0;1; amplitude des composantes de H associée à chaque type de frontière
bnd.ind = [3,4,3,2,3,2,3,2,1,2,5,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2, ...
2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,2, ...

```

[illegible]

## Attribution des constantes

```
clear equ
equ.matparams = 'n';
equ.n = 'nAir','nAg','nGlass','nPMMA'; indices utilisés dans la géométrie
equ.ind = [1,1,2,2,4,3,2,2,2,2,2,2,1,2,2,2,2,2,2,2]; attribution des indices
appl.equ = equ;
appl.var = 'epsilon0','8.854187817e-12*1e-9', ...
'mu0','4*pi*1e-7*1e-9', ...
'lambda0','532', ...
'nu','1e9'; constantes physiques
fem.appl1 = appl;
fem.border = 1;
fem.units = 'SI';
```

## Expressions sur sous-domaines

```
clear equ  
equ.ind = [1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1];  
equ.dim = 'Hz';  
fem.equ = equ;
```

## Résolution du problème

```
fem=multiphysics(fem);
fem.xmesh=meshextend(fem);
fem.sol=femlin(fem, ...
'solcomp','Hz', ...
'outcomp','Hz');
```

#### B.4 Définition de la fonction gaussienne

## Fichier Gaussienne-2D

```
function [f] = Gaussienne-2D(X,x)
```

Définition d'une fonction gaussienne en fonction des paramètres  $X = [E_{max}$   
 $E_{min}$  sigma (en nm)]

$$f = (X(1) - X(2)). * exp(-4 * x.^2 ./ X(3)^2) + X(2);$$

## B.5 Calcul des résidus pour la modélisation de données par une gaussienne

### Fichier Residus-2D

```
function [R] = Residus-2D(X,Mesures,x)
```

### Calcul des résidus modèle théorique gaussien - Mesures

```
f = Gaussienne-2D(X,x);
```

```
R = f-Mesures;
```

## B.6 Calcul de la fonction de mérite pour l'optimisation

### Fichier Fonction-merite-2D

```
function [f] = Fonction-merite-2D(X,X0)
```

### Définition de la fonction de mérite

```
f = sum(X./X0);
```



## Annexe C

# Codes de calcul pour l'optimisation du profil de la cavité en trois dimensions

### C.1 Fichier principal de lancement de l'optimisation

#### Fichier Calcul-optimisation-3D

```
clear ;  
global fem ;
```

#### Définition des paramètres de la structure

```
L = 570 ; longueur de la fente  
d = 240 ; demi-largeur de la cavité  
a = 50 ; largeur de la fente  
h = 180 ; hauteur de la cavité  
e = 50 ; profondeur de la fente  
pas = pi/10 ; pas de discrétisation du contour  
N = 7 ; nombre de modes pris en compte dans la série de Fourier  
X = [L d a h e pas N] ;
```

#### Calcul du profil initial de la cavité

```
(A,B) = Coeff-contour-ini(L,d,a,pas,N) ; calcul des coefficients de Fourier du contour initial ovale  
Coeff-mod = 300*[1 1 1 1]' ; initialisation des modifications à apporter aux coefficients ; numéros  
impairs : x, numéros pairs : y
```

#### Initialisation

```
(F,Emax0,C0,D0) = Extraction-parametres-3D(Coeff-mod,X,A,B,[1 1 1]) ; calcul de la structure  
initiale  
P0 = [-Emax0,-C0,D0] ; parametres initiaux pour l'optimisation
```



**Optimisation**

```
Coeff-mod-min = fminsearch('Extraction-parametres-3D',Coeff-mod,[],X,A,B,P0);
```

**Calcul de la structure après optimisation**

```
(F,Emax,C,D) = Extraction-parametres-3D(Coeff-mod-min,X,A,B,[1 1 1]);
postplot(fem, ...
'slicedata','(normE-rfw)^2','cont','internal','unit','V/m', ...
'slicedlim',[0 200], ...
'slicexspacing',0, ...
'sliceyspacing',0, ...
'slicezspacing',[-(X(5)+10)], ...
'slicemap','jet(1024)', ...
'grid','on', ...
'campos',[-5400,-7050,5200], ...
'camtarget',[0,0,70], ...
'camup',[0,0,1], ...
'camva',9.5); tracé de l'intensité en sortie de la structure
```

## C.2 Extraction des caractéristiques du spot lumineux à partir du calcul FEM de la structure

**Fichier Extraction-parametres-3D**

```
function [F,Emax,C,D] = Extraction-parametres-3D(Coeff-mod,X,A,B,P0)
global fem
```

**Calcul du profil de la cavité**

```
Coeff-mod-x = [Coeff-mod(1 :2 :length(Coeff-mod)); zeros(length(A)-length(Coeff-mod(1 :2 :length(Coeff-mod))),1)]; modification des coefficients de Fourier de x
Coeff-mod-y = [Coeff-mod(2 :2 :length(Coeff-mod)); zeros(length(B)-length(Coeff-mod(2 :2 :length(Coeff-mod))),1)]; modification des coefficients de Fourier de y
Coeff-x = A+Coeff-mod-x; coefficients de Fourier de x
Coeff-y = B+Coeff-mod-y; coefficients de Fourier de y
(x,y) = Coordonnees-contour(Coeff-x,Coeff-y,X(6),X(7)); coordonnées du contour de la cavité
```

**Calcul de la structure**

```
Calcul-structure-3D(X,x,y);
```

**Extraction du champ**

```

x0 = -X(1)/2 : X(1)/2 ;
y0 = 0*ones(1,length(x0)) ;
z0 = -(X(5)+10)*ones(1,length(x0)) ;
V = postinterp(fem,'normE-rfw',[x0;y0;z0]) ; champ aux coordonnées x0 y0 z0

```

#### Modélisation du champ par une série de gaussiennes

```

X0 = [max(V) min(V) 35 120] ; valeurs initiales des paramètres Emax Emin w d (en nm)
LB = [max(V)-100 min(V)-100 0 50] ; minima des paramètres
UB = [max(V)+100 min(V)+100 100 200] ; maxima des paramètres
X-min = lsqnonlin('Residus-3D',X0,LB,UB,[],V,x0) ; paramètres après la modélisation

```

#### Calcul des paramètres mis en jeu dans l'optimisation

```

Emax = X-min(1) ; champ maximum
Emin = X-min(2) ; champ minimum (fond continu)
C = (Emax-Emin)/(Emax+Emin) ; contraste
D = X-min(3) ; largeur à mi-hauteur des spots
P = [Emax C D] ;
F = Fonction-merite-3D(P,P0) ; calcul de la fonction de mérite

```

## C.3 Calcul de la structure par le logiciel Comsol

### Fichier Calcul-structure-3D

```

function [] = Calcul-structure-3D(X,x,y)
global fem ;

```

#### Définition des paramètres

```

L = X(1) ; longueur de la fente
d = X(2) ; demi-largeur de la cavité
a = X(3) ; largeur de la fente
h = X(4) ; hauteur de la cavité
e = X(5) ; profondeur de la fente

```

#### Définition des constantes diélectriques des matériaux utilisés

```

fem.const = 'nGlass','1.48', ...
'nPMMA','1.49', ...
'nAg','0.05456-3.43029*i', ...
'nAir','1' ;

```

#### Version de Comsol utilisée

```

clear vrsn

```

```

vrsn.name = 'COMSOL 3.4';
vrsn.ext = '';
vrsn.major = 0;
vrsn.build = 249;
vrsn.rcs = 'Name : v34p';
vrsn.date = 'Date : 2007/10/23 11 : 46 : 22';
fem.version = vrsn;

```

### Définition de la géométrie

```

t1 = line2(x,y); profil 2D de la cavité
g1 = extrude(t1,'distance',h); cavité
g2 = block3(num2str(200+L+2*d),num2str(200+a+2*d),'100','base','corner','pos',
num2str(-(200+L+2*d)/2),num2str(-(200+a+2*d)/2),num2str(h),'rot','0'); PMMA
g3 = block3(num2str(200+L+2*d),num2str(200+a+2*d),num2str(e+h),'base','corner','pos',
num2str(-(200+L+2*d)/2),num2str(-(200+a+2*d)/2),num2str(-e),'rot','0'); argent
g4 = block3(num2str(L),num2str(a),num2str(e),'base','corner','pos',num2str(-L/2),num2str(-a/2),num2str(-
e),'rot','0'); fente
g5 = block3(num2str(200+L+2*d),num2str(200+a+2*d),'100','base','corner','pos',
num2str(-(200+L+2*d)/2),num2str(-(200+a+2*d)/2),num2str(-(100+e)), 'rot','0'); air
g6 = block3(num2str(100+L),num2str(100+a),'50','base','corner','pos',
num2str(-(100+L)/2),num2str(-(100+a)/2),num2str(-(50+e)), 'rot','0'); raffinement en sortie de
la fente

clear s
s.objs=g1,g2,g3,g4,g5,g6;
fem.draw=struct('s',s);
fem.geom=geomcsg(fem);

```

### Maillage de la géométrie

```

fem.mesh=meshinit(fem, ...
'hauto',5);
raffinement du maillage :
fem.mesh=meshrefine(fem, ...
'mcase',0, ...
'rmethod','longest');

```

### Définition des conditions aux limites

```

clear appl
appl.mode.class = 'ElectromagneticWaves';
appl.module = 'RF';
appl.gporder = 4;
appl.cporder = 2;
appl.assignsuffix = '-rfw';

```

```

clear prop
prop.inputvar='lambda';
appl.prop = prop;
clear bnd
bnd.mbsource = 'E','E','E','E';
bnd.E0 = 0;1;0;0;0;0;0;0;0;0; amplitude des composantes de E associée à chaque type de
frontière
bnd.type = 'M','cont','M','M'; différents types de frontières (M : frontière adaptée, cont : conti-
nuité)
bnd.beta = 'nPMMA*k0-rfw',0,'0.02-0.0001*i','nAir*k0-rfw'; vecteur d'onde associé à chaque
type de frontière
bnd.ind = [3,3,4,3,3,2,3,2,1,...
3,3,3,2,2*ones(1,length(x)),...
2,2,2,2,2,2,2,2,2,2,3,3,3]; attribution des frontières
appl.bnd = bnd;

```

#### Attribution des constantes clear equ

```

equ.matparams = 'n';
equ.n = 'nAir','nAg','nPMMA'; indices utilisés dans la géométrie
equ.ind = [1,2,3,1,1,3]; attribution des indices
appl.equ = equ;
appl.var = 'epsilon0','8.854187817e-21', ...
'mu0','4*pi*1e-16', ...
'lambda0','532'; constantes physiques
fem.appl1 = appl;
fem.frame = 'ref';
fem.border = 1;
clear units;
units.basesystem = 'SI';
fem.units = units;

```

```

clear ode
clear units;
units.basesystem = 'SI';
ode.units = units;
fem.ode=ode;

```

#### Résolution du problème

```

fem=multiphysics(fem);
fem=meshcaseadd(fem,'mgauto','shape');
fem.xmesh=meshextend(fem);
fem.sol=femstatic(fem, ...

```

```

'complexfun','on', ...
'solcomp','tExEyEz20','tExEyEz10','tExEyEz21', ...
'outcomp','tExEyEz20','tExEyEz10','tExEyEz21', ...
'linsolver','gmres', ...
'prefuntype','right', ...
'prefun','gmg', ...
'prepar','presmooth','sorvec','presmoothpar','seconditer',2,'postsmooth','sorvec','postsmoothpar',
'seconditer',2,'csolver','pardiso', ...
'mcase',[0 1]);

fem0=fem;
fem=meshcasedel(fem,[1]);

```

## C.4 Calcul analytique du profil initial ovale

### Fichier Contour-ovale

```

function [x,y,t] = Contour-ovale(L,d,a,pas)
global fem;

```

### Définition des constantes

```

R = d+a/2;
W = 2*L-2*a+2*pi*R; périmètre du contour de la cavité
theta = 0 :pas :2*pi-pas;
P = theta*W/(2*pi);
(x,y) = deal(zeros(1,length(theta)));

```

### Calcul du profil de la cavité pour chacune des quatre parties définies

```

for n = 1 :length(theta)
if 0 <= P(n) and P(n) < L-a partie 1
x(n) = -(L-a)/2+theta(n)*(W/(2*pi));
y(n) = -(d+a/2);
end
if L-a <= P(n) and P(n) < L-a+pi*R partie 2
x(n) = R*cos((W/(2*pi*R))*theta(n)-pi/2-(L-a)/R)+(L-a)/2;
y(n) = R*sin((W/(2*pi*R))*theta(n)-pi/2-(L-a)/R);
end
if L-a+pi*R <= P(n) and P(n) < 2*L-2*a+pi*R partie 3
x(n) = 3*(L-a)/2+R*pi-theta(n)*(W/(2*pi));
y(n) = d+a/2;
end

```

```

if 2*L-2*a+pi*R <= P(n) and P(n) < W partie 4
x(n) = R*cos(-(W/(2*pi*R))*theta(n)+pi/2+W/R)-(L-a)/2;
y(n) = R*sin(-(W/(2*pi*R))*theta(n)-pi/2+W/R);
end
end

```

$t = \text{atan2}(y,x)$ ; *recentrage des coordonnées par rapport aux axes*

## C.5 Calcul des coefficients de Fourier du contour ovale

### Fichier Coeff-contour-ini

```

function [A,B] = Coeff-contour-ini(L,d,a,pas,N)
global fem;

```

$(X,Y) = \text{Contour-ovale}(L,d,a,pas)$ ; *coordonnées du profil analytique*

```

Initialisation de la série de Fourier Coeff-x = [];
Coeff-y = [];

```

```

for n = 1 :2 :2*N+1 décomposition des coordonnées en série de cosinus et sinus
Coeff-x = [Coeff-x cos(n*t')];
Coeff-y = [Coeff-y sin(n*t')];
end

```

```

Résolution du système à partir des coordonnées du profil analytique
A = Coeff-x/X'; coefficients de Fourier pour x
B = Coeff-y/Y'; coefficients de Fourier pour y

```

## C.6 Calcul du profil de la cavité en fonction des coefficients de Fourier

### Fichier Coordonnees-contour

```

function [x,y] = Coordonnees-contour(A,B,pas,N)
global fem;

```

$(x,y) = \text{deal}(\text{zeros}(\text{size}(t)))$ ;

**Recomposition des coordonnées du contour à partir des coefficients de Fourier**

```

for m = 1 :N+1
x = x+A(m)*cos((2*m-1)*t);
y = y+B(m)*sin((2*m-1)*t);
end

```

**C.7 Définition de la fonction gaussienne****Fichier Gaussienne-3D**

```
function [Profil] = Gaussienne-3D(X,x)
```

**Définition d'une série de cinq gaussiennes à partir des paramètres  $X = [E_{max} \ E_{min} \ w \ d \ (\text{en nm})]$**

```
Profil = (X(1)-X(2))*(exp(-(x+2*X(4)).^2/X(3)^2)+exp(-(x+X(4)).^2/X(3)^2)+exp(-x.^2/X(3)^2)+exp(-(x-X(4)).^2/X(3)^2)+exp(-(x-2*X(4)).^2/X(3)^2));
```

**C.8 Calcul des résidus pour la modélisation de données par des gaussiennes****Fichier Residus-3D**

```
function [R] = Residus-3D(X,Mesures,x)
```

**Calcul des résidus modèle théorique gaussien - Mesures**

```
f = Gaussienne-3D(X,x);
R = f-Mesures;
```

**C.9 Calcul de la fonction de mérite pour l'optimisation****Fichier Fonction-merite-3D**

```
function [f] = Fonction-merite-3D(X,X0)
```

**Définition de la fonction de mérite**

```
f = sum(X./X0);
```